



Auto-organisation, écho et trafic microfluidique

Raphael Jeanneret

► To cite this version:

Raphael Jeanneret. Auto-organisation, écho et trafic microfluidique. Dynamique des Fluides [physics.flu-dyn]. Université Paris-Diderot - Paris VII, 2014. Français. NNT : . pastel-00935876

HAL Id: pastel-00935876

<https://pastel.archives-ouvertes.fr/pastel-00935876>

Submitted on 24 Jan 2014

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THÈSE

Présentée à

UNIVERSITÉ PARIS DIDEROT (PARIS 7)
SORBONNE PARIS CITÉ

Ecole doctorale :

MATIÈRE CONDENSÉE ET INTERFACES
(ED 518)

Par **RAPHAËL JEANNERET**

Pour obtenir le grade de DOCTEUR

Spécialité : PHYSIQUE DES LIQUIDES

AUTO-ORGANISATION, ÉCHO ET TRAFIC MICROFLUIDIQUE

Thèse dirigée par :

DENIS BARTOLO

Soutenue le : 15 JANVIER 2014

Devant la commission d'examen formée de :

M. Dirk Aarts
M. Denis Bartolo
M. Luca Cipelletti
M. Olivier Dauchot
M. Jean-Marc Di Meglio
M. Sébastien Manneville

Examineur
Directeur de Thèse
Rapporteur
Examineur
Président du jury
Rapporteur

Remerciements

La phase des remerciements est un passage malaisé de la rédaction du manuscrit. Je souhaiterais évidemment n'oublier personne et réussir à transmettre à travers ces quelques mots mon ressenti sur ces 3 années de thèse superbes. Exercice délicat. Mais il faut se lancer. Donc, à l'instar de mes petites gouttes, je me jette à l'eau.

Tout d'abord merci à toi Denis. J'aurais besoin de plus de quelques lignes pour décrire correctement ce que tu m'as apporté pendant ces trois et quelques années. Mais afin de ne pas lasser le lecteur après seulement un paragraphe, je vais être bref. Malgré l'entêtement de ma manip à ne pas vouloir me faire le plaisir de fonctionner, tu as toujours gardé une confiance en moi que tu as su me transmettre, dans la bonne humeur et avec un enthousiasme constant. Sans cela je serais aujourd'hui fortement endetté de puces microfluidiques, seringues, microscopes... qui seraient passés par la fenêtre, tu connais mon tempérament très calme... Tu as également su me transmettre ta curiosité et nombre de tes connaissances, scientifiques ou non. Pour tout cela, je peux affirmer sincèrement que je n'aurais pu souhaité meilleur professeur.

Je tiens également à remercier tous les membres, passés ou présents, du laboratoire PMMH. La bonne ambiance y règne quotidiennement et venir y travailler fut toujours un grand plaisir. Et, grâce à la diversité de la science effectuée dans ce laboratoire, et qui attise forcément la curiosité, j'estime très importante la chance d'avoir pu y travailler. Plus particulièrement je remercie mes potes de rédaction, Sophie, Joël et Bertrand sans qui les pauses "cacao + fort" - galettes bretonnes auraient été bien tristes. Merci également aux gestionnaires du labo Fred, Amina et Claudette pour leur efficacité et leurs sourires. Finalement je remercie mes différents co-bureaux et collègues de la Bartolo team d'avoir tour à tour supporté mes cris et sautes d'humeurs : David, Kevin, Jean-Baptiste, Antoine, Céleste, Nicolas D., Nicolas C. et Naïs (Sophie et Bertrand je vous ai déjà cités...).

Merci aussi au laboratoire Gulliver (plus spécialement les équipes MMN et

EC2M) qui fut mon deuxième laboratoire pendant cette thèse. Je tiens surtout à remercier Olivier, Maxime et Ziane de m'avoir accueilli très chaleureusement pendant quelques mois lors des travaux au PMMH. Merci aussi à Fabrice pour son expertise et ses blagues. Finalement merci à Clémence et Marie-Caroline avec qui j'ai partagé le vol transatlantique le plus sympathique qui soit !

J'aimerais également remercier les membres de mon jury : Jean-Marc Di Meglio, Olivier Dauchot et Dirk Aarts pour avoir accepté d'en faire partie, Sébastien Manneville et Luca Cipelletti pour avoir assumé la lourde tâche de rapporteurs. Ce fut pour moi un grand et réel plaisir.

Bien sur ces remerciements ne seraient pas complets si je ne citais pas ma famille et mes amis. Donc merci à vous, mes parents, pour ce pot de thèse parfait (la bouffe c'est important chez les Jeanneret). Et pour votre fierté. Votre émotion pendant cette journée de soutenance et la suivante m'a rendu très heureux. Tonio, je t'associe également à ces paroles (ces écrits plutôt), j'ai été comblé que tu sois là (malgré ton retard) ! Pepe und Moschi, j'aurais aimé vous voir dans la salle et trinquer avec vous ensuite, mais vous aviez mieux à faire sur le Nouveau Monde (et vous avez bien raison) ! En tout cas, le néo-parisien squatteur vous dit merci... ces années proches de vous étaient géniales. Merci également à toi Christelle, on ne se voit pas aussi souvent qu'on le souhaiterait, mais grâce à toi j'ai pu être zen pendant cette belle journée. Finalement je voudrais remercier mes amis, infiniment, vous êtes tip top. Mes colocos successifs Marco, Millo (les cuistots ritaux, hum !), Olivia (la crazy instit !), Dora et Anne (les fonceuses !), vivre avec chacun de vous a été une superbe expérience et à chaque fois une belle rencontre (ou redécouverte), je me serai bien marré. Les polytechniciens (non non, il n'y a pas d'erreur typographique) Simon, Fred et Arthur, les soirées "à l'ancienne" à la Roquette vont me manquer. Elo, merci pour ces apéros-balcon devenus une indispensable habitude. Romain le couz, ces weekends lyonnais étaient toujours parfaits et mémorables, pour ça et tout le reste, sanglier voudrait te faire une ptite ptite ptite bise. Lucas le tinois, merci de ne pas t'être arrêté à cette première rencontre peu prometteuse en 6eme... vive la Matrice de l'Amour dont tu es le meilleur représentant. Et enfin, mes 2 autres parents, Xavier et Lily, je vous remercie pour tout. Xavier, tes conseils seront toujours bons et ta sage folie m'éclatera toujours, ahou ahou ahou (cri du loup) ! Et Lily, BB, ton imagination et ta rêverie me transporte à chaque fois que l'on se voit, tu es parfaite. Quitter Paris sera dur, principalement grâce à toi.

Table des matières

1	Introduction	7
1.1	Réversibilité des écoulements visqueux	7
1.1.1	Deux exemples classiques	8
1.1.2	Invariance par reparamétrisation du temps	9
1.2	Robustesse de la réversibilité temporelle hydrodynamique	11
1.2.1	Chaos Lagrangien	11
1.2.2	Expérience d'écho chaotique	12
1.2.3	Perte de fidélité dans les systèmes hamiltoniens	14
1.3	Expériences d'écho "macroscopiques" : état de l'art	16
1.3.1	Suspensions cisailées	16
1.3.2	Echo dans un réseau unidimensionnel de boucles	18
1.3.3	Autres exemples d'expériences d'écho en matière molle	20
1.4	Objectifs et principaux résultats de la thèse	20
1.4.1	Objectifs	20
1.4.2	Principaux résultats	23
1.5	Bibliographie	27
2	Design des expériences microfluidiques	31
2.1	Stickers microfluidiques : méthode et avantages	32
2.1.1	Protocole de fabrication des stickers microfluidiques	34
2.1.2	Avantages des stickers	36
2.2	Faire des gouttes : de l'émulsion à la goutte unique	38
2.2.1	Production d'une émulsion monodisperse	39
2.2.2	Production d'une goutte unique	43
2.3	Prototypage d'une expérience d'écho	46
2.3.1	Optimisation de la chambre de visualisation	46
2.3.2	Contrôle des écoulements	48
2.4	Acquisition, gestion et analyse des données	51

2.4.1	Détection des particules	52
2.4.2	Tracking des particules	54
2.5	Annexes	58
2.5.1	Protocole de fabrication des vannes microfluidiques	58
2.5.2	Description de la machine servant à l'acquisition des films	60
2.6	Bibliographie	61
3	Propagation d'ondes de densité et structure statique d'une émulsion bidimensionnelle simplement advectée	63
3.1	Ecoulement et interactions hydrodynamiques dans une cellule de Hele-Shaw	63
3.2	Résultats expérimentaux et théoriques	64
3.2.1	Hydrodynamic fluctuations in confined particle-laden fluids	65
3.2.2	Structure statique d'une émulsion bidimensionnelle simplement advectée	72
3.3	Annexes	75
3.3.1	Ecoulement dans une cellule de Hele-Shaw	75
3.3.2	Ecoulement potentiel autour d'un obstacle cylindrique . .	76
3.4	Bibliographie	79
4	Expérience hydrodynamique d'écho	81
4.1	Geometrically-protected reversibility in hydrodynamic Loschmidt-echo experiments	82
4.2	Perspectives	95
4.2.1	Pistes de réflexion	95
4.2.2	Nouvelles perspectives sur la dynamique oscillante	99
4.3	Bibliographie	105
5	Trafic de particules dans un réseau unidimensionnel de boucles	107
5.1	Dynamique d'une goutte dans un réseau unidimensionnel	110
5.2	Quelques résultats numériques pour $N_p \gg 1$	112
5.3	Etude asymptotique à 3 corps	113
5.3.1	3 types de dynamiques	114
5.3.2	Hamiltonian traffic dynamics in microfluidic-loop networks	116
5.4	Conclusion	125
5.5	Annexes : Hamiltonian traffic dynamics in microfluidic-loop networks : Supplementary informations	126
5.5.1	Oscillatory dynamics	126
5.5.2	Traffic Scenarios	126
5.5.3	Eigenvalues in the regions A and B	129
5.5.4	Demonstration of the identity : $\mathcal{TST}\mathcal{S} = \mathbb{I}$	129
5.6	Bibliographie	131

CHAPITRE 1

Introduction

Ce travail de thèse porte principalement sur deux études de la dynamique de particules en interactions hydrodynamiques dans des milieux confinés et à faible nombre de Reynolds. La première est une expérience d'écho sur un système bidimensionnel à grand nombre de degrés de liberté. La seconde est une étude de trafic d'un nombre restreint de particules dans un réseau de canaux unidimensionnels. Ces deux études sont donc de natures différentes mais sont intimement liées par une problématique initiale fondamentale : comprendre la perte collective de la réversibilité temporelle dans un système de particules en interactions hydrodynamiques.

Ce chapitre a pour but de présenter les problématiques et les enjeux de ces études en passant en revue les différentes recherches déjà effectuées sur ce type de systèmes. Il a également pour objectif de mettre en évidence la physique sous-jacente à ces systèmes plaçant cette thèse à l'interface de 3 grands domaines : l'hydrodynamique, la matière molle et les systèmes dynamiques.

Il s'organise de la façon suivante. La première section introduit la propriété de réversibilité hydrodynamique des écoulements visqueux. La seconde présente la notion de chaos Lagrangien et son impact sur la réversibilité des écoulements. Dans la troisième partie, plusieurs exemples d'expériences d'écho sur des systèmes de particules en interactions hydrodynamiques sont décrits. Finalement, la dernière section résume synthétiquement les principaux résultats de la thèse.

1.1 Réversibilité des écoulements visqueux

Les écoulements de liquides visqueux exhibent des dynamiques très surprenantes et souvent contre-intuitives. En effet, ceux-ci ont la propriété d'être invariants par renversement du temps. Cette propriété est illustrée dans la section

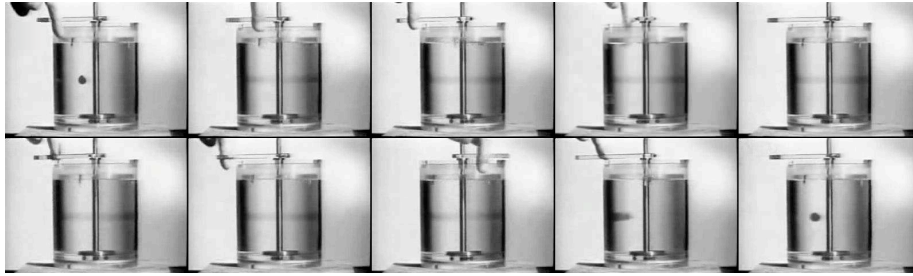


FIGURE 1.1: Images extraites du film de G.I. Taylor illustrant la réversibilité des écoulements à faible nombre de Reynolds [1]. La goutte de colorant est mélangée au liquide visqueux en tournant le cylindre intérieur, puis est démélangée en imprimant le même nombre de rotations dans l'autre sens.

suivante par 2 exemples très classiques et marquants. Elle sera justifiée plus quantitativement par la suite.

1.1.1 Deux exemples classiques

Les 2 exemples mettant en jeu des écoulements visqueux présentant une dynamique réversible sont les suivants : l'expérience d'écho de G.I. Taylor [1] et le Scallop Theorem de E. Purcell [2].

Ce premier effectue une expérience de mélange dans une cellule de Couette cylindrique remplie d'un liquide visqueux. Il injecte une goutte de colorant au centre de la cellule puis imprime 4 tours au cylindre intérieur afin de mélanger la goutte de colorant, voir figure 1.1. En effectuant 4 tours au même cylindre dans le sens inverse, la goutte se "démélange" et reprend finalement sa forme initiale.

Le Scallop Theorem de Purcell quant à lui peut s'énoncer de la façon suivante. A faible nombre de Reynolds, aucune propulsion ne peut être réalisée au moyen d'un mouvement réciproque, voir figure 1.2. De plus, tant que le nombre de Reynolds est nul, peu importe la vitesse à laquelle s'effectue le mouvement aller et le mouvement retour, le déplacement sera nul. En effet, l'équation de Stokes n'est pas seulement invariante par renversement du temps, mais invariante par reparamétrisation du temps, voir section 1.1.2. Le nom du théorème a été donné en référence à la coquille St jacques (Scallop en anglais) qui utilise schématiquement un mouvement réciproque (en réalité le mouvement est beaucoup plus complexe) pour avancer. Celle-ci ouvre lentement sa coquille puis la referme rapidement pour éjecter de l'eau. Compte tenu de sa taille, l'inertie est alors importante et cette différence de vitesse entre la phase aller et retour lui permet de se déplacer. A des échelles plus petites en revanche, les micro-organismes ont besoin de développer des stratégies de propulsion différentes. Principalement, ceux-ci utilisent des flagelles qu'ils déforment de manière non-réciproque afin de se propulser. On peut citer notamment le spermatozoïde, la

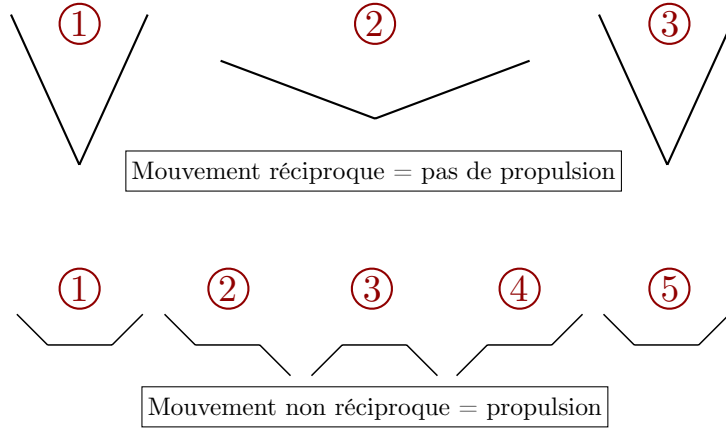


FIGURE 1.2: Illustration du Scallop Theorem de E. Purcell. A faible nombre de Reynolds, un mouvement réciproque ne peut conduire à une propulsion nette sur un cycle, alors qu'un cycle non-réciproque le permet.

bactérie *E. Coli* ou encore l'algue *Volvox*. L'étude de la propulsion animale à faible nombre de Reynolds est un domaine d'intense recherche depuis une vingtaine d'années [3, 4, 5, 6, 7, 8].

La section suivante justifie quantitativement cette invariance par renversement temporel.

1.1.2 Invariance par reparamétrisation du temps

Les écoulements de fluides newtoniens incompressibles sont décrits de manière générale par l'équation de Navier-Stokes. Cette équation s'obtient en appliquant le principe fondamental de la dynamique à un volume \mathcal{V} de fluide donnant une relation intégrale sur ce volume. L'équation de Navier-Stokes est donc un bilan de quantité de mouvement par unité de volume :

$$\rho \left[\frac{\partial \mathbf{v}}{\partial t} + (\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v} \right] = \eta \Delta \mathbf{v} - \rho \nabla P + \rho f \quad (1.1)$$

$$\text{div}(\mathbf{v}) = 0 \quad (1.2)$$

f représente ici les forces volumiques extérieures pouvant s'appliquer sur le fluide, telle que la pesanteur. Dans toute la suite, aucune force extérieure ne s'appliquera et ce terme sera nul. L'équation (1.2) traduit l'incompressibilité des écoulements.

Plusieurs nombres sans dimension peuvent être construits à partir de cette équation et permettent de simplifier le problème dans certaines limites. Tout d'abord si l'on compare les forces d'inertie $\rho(\mathbf{v} \cdot \nabla) \mathbf{v}$ aux forces de frottement

visqueux $\eta\Delta\mathbf{v}$, on obtient le nombre de Reynolds :

$$\text{Re} = \frac{|\rho(\mathbf{v}\cdot\nabla)\mathbf{v}|}{|\eta\Delta\mathbf{v}|} \sim \frac{\rho UL}{\eta} \quad (1.3)$$

où U est une vitesse caractéristique de l'écoulement et L une longueur caractéristique du problème. Dans la limite où ce nombre Re est petit devant l'unité, alors les forces visqueuses sont nettement plus importantes que les forces d'inertie et le terme $\rho(\mathbf{v}\cdot\nabla)\mathbf{v}$ peut être négligé dans l'équation de Navier-Stokes. Ainsi dans ce régime visqueux, le terme non-linéaire est supprimé et la physique devient beaucoup plus simple : pour un problème avec conditions aux limites données il y a unicité de la solution. Ce régime est obtenu si les écoulements sont lents comme le mouvement des glaciers ou du manteau terrestre ou si la taille caractéristique du problème est très petite, comme dans le cas du déplacement de bactéries ou encore si le fluide considéré est très visqueux, comme du miel, du pétrole,... C'est dans cette limite de faible nombre de Reynolds que toutes les études présentées dans ce manuscrit se placent.

Un deuxième nombre sans dimension peut être construit en comparant le temps caractéristique de variation de la vitesse τ au temps caractéristique de diffusion de la quantité de mouvement $\tau_d = \rho L^2/\eta$:

$$\text{N} = \frac{|\rho\partial\mathbf{v}/\partial t|}{|\eta\Delta\mathbf{v}|} = \frac{\tau_d}{\tau} \quad (1.4)$$

Si les variations de vitesse s'effectuent sur des échelles de temps grandes devant la diffusion de la quantité de mouvement alors le terme instationnaire $\partial\mathbf{v}/\partial t$ de l'équation de Navier-Stokes peut lui aussi être négligé. Cette limite peut s'interpréter comme suit : sur le temps caractéristique τ , les variations de vitesse se propagent par diffusion visqueuse sur une distance nettement supérieure à la taille caractéristique L du problème. Il y a alors instantanéité de la dynamique.

Dans ces deux limites $\text{Re}, \text{N} \ll 1$, l'équation de Navier-Stokes se simplifie nettement pour donner l'équation de Stokes stationnaire :

$$\eta\Delta\mathbf{v} - \rho\nabla P = \mathbf{0} \quad (1.5)$$

$$\text{div}(\mathbf{v}) = 0 \quad (1.6)$$

Cette équation possède la propriété d'être invariante par reparamétrisation du temps : par exemple, si $\mathbf{v}(x, y, z)$ est solution de l'équation avec un champ de pression $p(x, y, z)$, alors le champ de vitesse $-\mathbf{v}(x, y, z)$ sera aussi solution du problème à condition d'inverser les contraintes et les conditions aux limites.

Cette formulation mathématique des équations hydrodynamiques à faible nombre de Reynolds stationnaire justifie bien la dynamique relatée sur les 2 exemples de la section précédente.

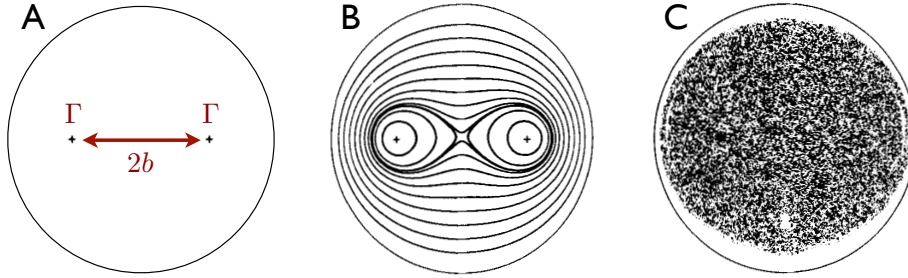


FIGURE 1.3: A. Système utilisé pour l'expérience numérique de Aref [9]. B. Trajectoires de 15 particules passives placées sur l'axe horizontal et vertical de la cellule dans le cas $b = 0.5$ et $T = 0.05$ (paramètres adimensionnés). C. Même tracé pour les paramètres adimensionnés $b = 0.5$ et $T = 1.5$. Les panels B et C sont extraits de [9].

1.2 Robustesse de la réversibilité temporelle hydrodynamique

L'invariance par reparamétrisation du temps semble indiquer que toute expérience d'écho hydrodynamique (avec $Re \ll 1$ et $N \ll 1$) est triviale. Mais dans un système physique réel il existe toujours des contributions non-réversibles, même infinitésimales. En effet, un système physique a toujours une inertie non-nulle. De plus, il ne peut jamais être considéré comme totalement isolé. Par exemple, dans l'expérience d'écho de Taylor relatée précédemment, le système est en contact avec un thermostat, l'air environnant. Ceci implique que les molécules du liquide diffusent. Or la diffusion thermique est un phénomène intrinsèquement irréversible. La conséquence est que la goutte obtenue à la fin de l'expérience n'a pas la forme exacte de la goutte initiale, voir figure 1.1.

Dans ce cas là, l'irréversibilité observée est très faible (microscopique), car la dynamique du processus est intégrable. Mais si la dynamique réversible est aussi chaotique, alors toutes les contributions irréversibles microscopiques peuvent être amplifiées conduisant à l'émergence d'une irréversibilité macroscopique. C'est ce couplage entre réversibilité et dynamique chaotique que je développe dans cette section.

1.2.1 Chaos Lagrangien

Le problème d'advection par un écoulement d'une particule passive (i.e. un traceur) sous le point de vue Lagrangien définit un système dynamique :

$$\dot{x} = u(x, y, z, t), \quad \dot{y} = v(x, y, z, t), \quad \dot{z} = w(x, y, z, t) \quad (1.7)$$

Dans cette équation, u, v, w sont les composantes du champ de vitesse de l'écoulement et $\dot{x}, \dot{y}, \dot{z}$ sont les composantes de la vitesse de la particule dans les

directions considérées. Pour une géométrie bidimensionnelle et un écoulement incompressible, ce système dynamique est hamiltonien. En effet, la fonction de courant ψ définit directement le hamiltonien du système, car $u = -\partial\psi/\partial y$ et $v = \partial\psi/\partial x$:

$$\dot{x} = -\frac{\partial\psi}{\partial y}, \quad \dot{y} = \frac{\partial\psi}{\partial x} \quad (1.8)$$

Les positions x, y de la particule sont alors les variables conjuguées du système. Si l'écoulement considéré est stationnaire, alors la fonction de courant est indépendante du temps et le système dynamique défini est intégrable [9]. En revanche, si cette fonction de courant dépend du temps, le système obtenu peut devenir chaotique.

C'est cette observation que H. Aref a mis à profit dans le papier fondateur "Stirring by chaotic advection" (*J. Fluid Mech* **143**, 1-21 (1984)) [9] présentant sur un exemple une méthode d'obtention d'écoulement laminaire et chaotique. En appliquant un forçage non-stationnaire au liquide considéré, Aref voit apparaître une dynamique chaotique des particules passives pour une large gamme des paramètres du problème. Précisément, la géométrie considérée est un disque de liquide avec 2 agitateurs ponctuels de circulation Γ placés sur un diamètre du disque et séparés d'une distance $2b$, voir figure 1.3A. Le forçage consiste à faire fonctionner alternativement chacun des agitateurs pendant un temps $T/2$. A circulation fixée, la variation de la séparation b et de la période T de l'actuation engendre une dynamique tantôt régulière, tantôt chaotique, voir figure 1.3B et C.

Le principe de l'obtention de cette dynamique chaotique est l'étirement puis le repliement successif des trajectoires, à l'instar de la célèbre application du boulanger (Baker's map). Comme suggéré initialement par Aref, ce principe a eu de nombreuses applications expérimentales pour l'amélioration du mélange de fluides visqueux [10, 11, 12].

1.2.2 Expérience d'écho chaotique

Une question légitime sur la réversibilité hydrodynamique est de savoir ce que donnerait l'expérience d'écho de Taylor lorsque le forçage est tel qu'il donne lieu à une dynamique chaotique. C'est ce problème qu'ont soulevé H. Aref et S.W. Jones en 1988 dans [13].

Leur système est très proche de celui de Taylor. Il consiste en deux cylindres de rayon R_1 et R_2 ($R_2 > R_1$) excentrés dont le gap entre les deux est rempli d'un liquide visqueux, voir figure 1.4A. Ces cylindres tournent à des vitesses angulaires Ω_1 et Ω_2 respectivement. Dans cette simulation numérique, les auteurs comparent les résultats de deux expériences d'écho, l'une dont l'écoulement est régulier l'autre chaotique. L'écoulement régulier est simplement produit par la rotation continue des deux cylindres. L'écoulement chaotique quant à lui est produit en faisant tourner successivement les deux cylindres pendant un temps τ . De plus, une irréversibilité microscopique est introduite en rajoutant une diffusivité D à chacune des particules. Les paramètres de contrôle de l'expérience sont le rapport des vitesses des cylindres Ω_1/Ω_2 et cette diffusivité D .

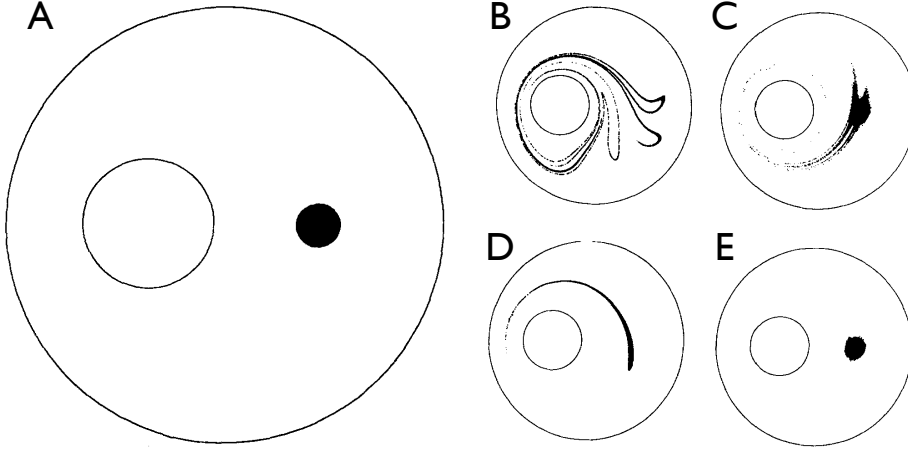


FIGURE 1.4: Figures extraites de [13]. A. Système utilisé pour l'expérience numérique. B et C. Respectivement, état à mi-parcours et état final du système chaotique pour $\Omega_1/\Omega_2 = 12$, $D = 10^{-7}R_2^2/\tau$ et $t = 6\tau$. D et E. Même tracé que B et C pour le système intégrable.

Le principe des deux expériences est de suivre la dynamique de 10000 particules passives constituant initialement un disque pendant un temps t dans un sens puis un temps t où le forçage est inversé. L'état initial est représenté figure 1.4A. Un exemple des états à mi-parcours pour la dynamique chaotique et régulière sont représentés figure 1.4B et D respectivement. Ils correspondent à $\Omega_1/\Omega_2 = 12$, $D = 10^{-7}R_2^2/\tau$ et $t = 6\tau$. Les états finaux de l'expérience pour ce jeu de paramètres sont donnés figure 1.4C et E. On peut noter déjà sur cet exemple que le système chaotique donne une dynamique d'écho beaucoup moins réversible que le système intégrable. En effet, dans ce système intégrable la diffusion perturbe de manière marginale la réversibilité, alors que celle-ci est totalement perdue au niveau des trajectoires de traceurs Browniens pour le système chaotique.

Afin de donner une mesure quantitative de la réversibilité, les auteurs définissent la fraction $P(t)$ de particules revenant dans le disque initial. Ce type de fonction $P(t)$ sera appelé fidélité dans la suite du manuscrit. Leurs résultats sont donnés figure 1.5 (A, B, C et D) pour 4 diffusivités D et 2 rapports de vitesses Ω_1/Ω_2 différents. Les panels A et B correspondent à la dynamique chaotique alors que les panels C et D proviennent de la dynamique intégrable. A faible diffusivité, la dynamique chaotique est nettement plus irréversible que la dynamique régulière. Cette observation est beaucoup moins nette pour les coefficients de diffusion importants. En effet, lorsque la diffusivité est grande, celle-ci est suffisante pour faire sortir les particules du disque initial même pour la dynamique régulière. Cette observation est très logique : dans la limite d'une diffusion infinie, l'amplification chaotique de la séparation des trajectoires a une

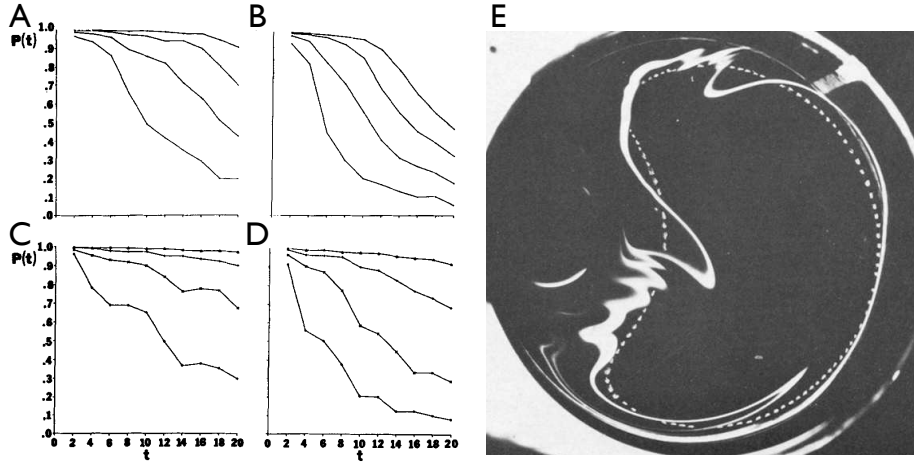


FIGURE 1.5: Fraction de particules $P(t)$ retournant dans le disque initial à la fin de l'expérience d'écho pour 4 valeurs différentes de la diffusivité, $D = 10^{-8}, 10^{-7}, 10^{-6}, 10^{-5} R_2^2 / \tau$ (de haut en bas). A. Système chaotique $\Omega_1/\Omega_2 = 6$. B. Système chaotique $\Omega_1/\Omega_2 = 12$. C. Système intégrable $\Omega_1/\Omega_2 = 6$. D. Système intégrable $\Omega_1/\Omega_2 = 12$. E. Figure extraite de [10]. Observation expérimentale de la non-réversibilité lors d'une expérience d'écho sur un système chaotique.

contribution évidemment négligeable à la perte de fidélité.

Ce phénomène d'amplification de l'irréversibilité par la nature chaotique de la dynamique avait déjà été relaté dans [10] mais non étudié de manière détaillée. Le système expérimental utilisé alors est le même que le système numérique d'Aref et Jones. Sous un forçage similaire, les particules constituant le colorant, placé initialement en forme de croissant de lune (traits discontinus figure 1.5E), évoluent selon une dynamique chaotique. Après renversement des contraintes, le colorant prend une forme similaire au profil original, avec cependant de grandes fluctuations. Celles-ci sont d'autant plus importantes que les particules sont passées au travers de zones chaotiques de la cellule.

Finalement, comme suggéré par Aref et Jones, ces résultats peuvent être potentiellement utilisés pour séparer efficacement une mixture de particules passives n'ayant pas les mêmes diffusivités. C'est dans cette optique que le groupe d'A. Stroock a conduit son étude numérique présentée dans [14].

1.2.3 Perte de fidélité dans les systèmes hamiltoniens

Les expériences hydrodynamiques d'écho consistant à regarder la réversibilité de particules passives, à savoir mesurer la probabilité que celles-ci reviennent à leurs positions initiales après un forçage réciproque, constituent des études très similaires à celles envisagées dans le contexte des systèmes dynamiques classiques ou quantiques.

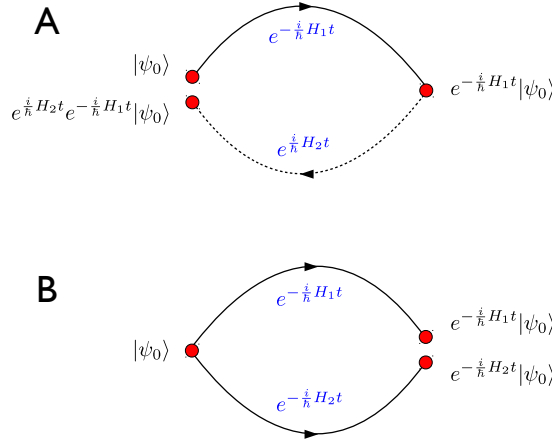


FIGURE 1.6: Schéma illustrant l'évolution temporelle de la fonction d'onde ψ_0 pour : A. le Loschmidt-echo et B. la fidélité.

Dans le cas quantique qui a donné lieu à la majorité de ces études, on regarde comment évolue une fonction d'onde initiale ψ_0 sous application d'un hamiltonien H_1 pendant un temps t puis d'un second hamiltonien $H_2 = H_1 + dH$ lorsque le temps est inversé. La comparaison de l'état initial et de l'état final se fait au travers de la fonction "overlap" qui définit la fidélité du processus d'écho :

$$\mathcal{L}(t) = |\langle \psi_0 | e^{iH_2 t/\hbar} e^{-iH_1 t/\hbar} | \psi_0 \rangle|^2 \quad (1.9)$$

Cette fonction est communément appelé Loschmidt-echo. La différence entre cette appellation et la fidélité est illustrée figure 1.6, tirée de [15]. Le résultat est exactement le même, seulement la façon dont est définie conceptuellement la fonction diffère. Cette mesure de l'irréversibilité est très proche des mesures effectuées sur les systèmes hydrodynamiques de particules passives.

L'idée sous-jacente à ces études est que l'analyse de la décroissance de la fidélité en fonction du temps doit permettre de trouver une origine à l'émergence de l'irréversibilité en cherchant les caractères universels de cette décroissance. Ce problème vieux de plus de 130 ans date du débat fondamental entre J.J. Loschmidt et L. Boltzmann lorsque celui-ci bâtit les bases de la physique statistique avec le théorème-H et le second principe de la thermodynamique.

Depuis la parution de l'article de Peres en 1984 [16] étudiant la stabilité de systèmes quantiques, de nombreuses études très formelles sont conduites en chaos quantique et sur des systèmes dynamiques classiques afin de comprendre l'évolution de la fidélité au cours d'un cycle [17, 18, 19, 20, 15].

Les concepts théoriques, très abstraits, développés dans toutes ces études sont a priori très éloignés de la perspective des travaux expérimentaux présentés dans ce manuscrit. En revanche ils ont conduit à des applications très concrètes en imagerie. En effet, la technique d'IRM par exemple repose sur une mesure

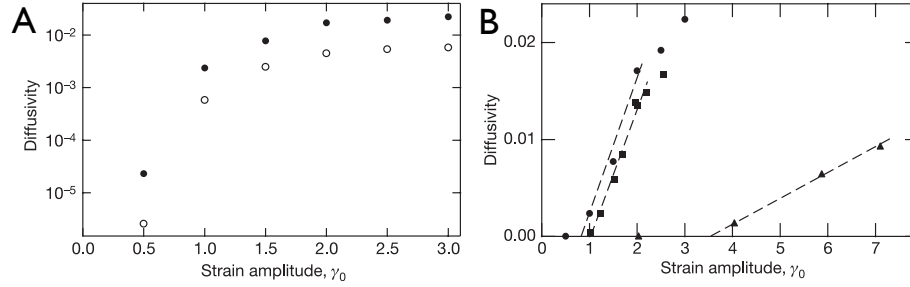


FIGURE 1.7: A. Diffusivité dans la direction (Ox) (disques noirs) et dans la direction (Oz) (cercles noirs) en fonction de l’amplitude γ_0 pour une concentration volumique $\phi = 0.40$. Echelle semi-logarithmique. B. Diffusivité dans la direction (Ox) en fonction de l’amplitude γ_0 pour 3 concentrations différentes : $\phi = 0.20$ (triangles noirs), $\phi = 0.30$ (carrés noirs) et $\phi = 0.40$ (disques noirs).

de la perte de la réversibilité de la dynamique de renversement de spins.

1.3 Expériences d’écho ”macroscopiques” : état de l’art

La question initiale des recherches évoquées ici concerne l’extension des notions présentées dans la partie précédente 1.2 à des systèmes de particules cette fois en interactions hydrodynamiques (i.e. pas des traceurs passifs). Cette question a déjà été abordée par deux séries d’expériences apportant des réponses partielles au problème : une expérience d’écho sur un système tridimensionnel de particules solides non-Browniennes cisailées [21, 22] et une expérience d’écho sur un système de gouttes dans un réseau unidimensionnel de boucles [23]. Cette section présente ces deux séries d’expérience en relatant les résultats obtenus et les questions qu’elles soulèvent.

1.3.1 Suspensions cisailées

Cette partie présente les résultats principaux de [21] et [22]. Le système expérimental est le même que celui de Taylor introduit précédemment, à savoir une cellule de Couette cylindrique remplie d’un liquide visqueux. Il présente cependant deux différences fondamentales par rapport à l’expérience de Taylor. Tout d’abord, la goutte de colorant est remplacée par une suspension homogène concentrée de particules non-Browniennes (en PMMA et de diamètre $d = 230 \pm 20 \mu\text{m}$). De plus, la dynamique est étudiée sur un grand nombre de cycle d’écho.

L’expérience relatée dans [21] consiste à cisailer la suspension de manière réciproque sur un nombre important de cycles en tournant le cylindre intérieur d’un angle $\theta(t) = \theta_0 \sin(\omega t)$. Ceci implique un écoulement sinusoïdal de cisaille-

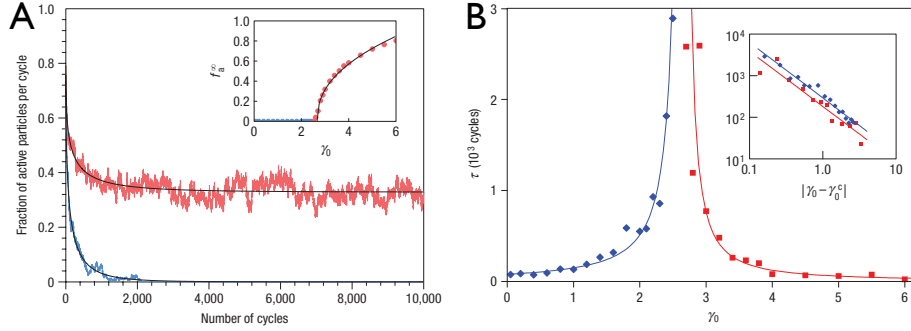


FIGURE 1.8: A. Fraction de particules actives en fonction du nombre de cycles pour 2 amplitudes γ_0 différentes à $\phi = 0.2$. Bleu : $\gamma_0 = 2.0 < \gamma_c$, rouge : $\gamma_0 = 3.0 > \gamma_c$. Inset : valeur stationnaire de f_a en fonction de γ_0 . B. Temps d'établissement du régime stationnaire τ de la fraction de particules actives en fonction de l'amplitude γ_0 . On observe la divergence de ce temps à l'approche de la transition.

ment au liquide visqueux d'amplitude $\gamma_0 = R_1\theta_0/W$, où R_1 est le rayon du cylindre intérieur et W la largeur du gap entre les deux cylindres. Les auteurs suivent alors sur environ 1000 cycles les trajectoires stroboscopées d'une centaine de particules au centre du gap dans le plan défini par la verticale (Oz) et la direction de l'écoulement (Ox).

En calculant le déplacement quadratique moyen sur les trajectoires stroboscopées dans ces 2 directions $\langle \Delta z^2 \rangle$ et $\langle \Delta x^2 \rangle$, les auteurs montrent que le mouvement des particules est diffusif : $\langle \Delta z(x)^2 \rangle \propto n$, où n est le temps compté en nombre de cycles. Le coefficient de proportionnalité définit une diffusivité $D_{z(x)}$, représentée figure 1.7 en unité adimensionnée en fonction de l'amplitude γ_0 . Cette diffusivité reste très faible (considérée nulle) en deçà d'une amplitude γ_c puis augmente rapidement au delà. Cette amplitude critique dépend de la fraction volumique de la suspension comme $\gamma_c \sim \phi^{-2}$. Ainsi, les auteurs relatent une transition entre un état réversible où les particules reviennent à leurs positions initiales à faible amplitude et un état irréversible où les particules ont un mouvement stroboscopé stochastique. Finalement en s'appuyant sur une simulation numérique de type Stokesian Dynamics reproduisant qualitativement leurs résultats expérimentaux, les auteurs montrent que la dynamique stroboscopée des particules est chaotique avec un exposant de Lyapunov λ corrélé à la diffusivité.

Dans un second article [22], le même groupe montre par l'expérience et par un modèle que cette transition réversible/irréversible est un phénomène critique (transition de phase du second ordre) caractérisé par un temps d'établissement du régime stationnaire divergeant à l'approche de la transition.

Leur modèle implémenté numériquement est très simple et ne prend pas en compte les interactions hydrodynamiques entre les particules, seulement des

interactions de contact à deux corps. Il consiste en la règle suivante : si pendant le premier demi-cycle deux particules sont amenées à se collisionner du fait du cisaillement, alors un déplacement de direction et d'amplitude aléatoires est attribué à chacune de ces particules sur la dynamique stroboscopée. Ces particules subissant une collision sont dénommées "actives", les autres étant "inactives" puisqu'elles n'auront pas bougé de leurs positions précédentes.

En comptant la fraction f_a de particules actives en fonction du nombre de cycles, les auteurs relatent deux comportements, voir figure 1.8A : (i) En dessous d'une amplitude γ_c , cette fraction converge vers 0. Le système évolue donc vers un état gelé où les particules suivent le même mouvement à chaque cycle. C'est état est appelé état absorbant et caractérise une dynamique complètement réversible. (ii) Au dessus de γ_c , la fraction f_a diminue, mais converge vers une valeur finie : le système ne trouve pas de configuration conduisant à $f_a = 0$. L'état stationnaire est donc caractérisé par un nombre constant de particules actives, ces particules n'étant pas les mêmes à chaque cycle. En résumé, le système s'auto-organise de manière aléatoire au cours de la dynamique afin de minimiser la fraction f_a . La transition entre l'état absorbant (réversible) et l'état actif (irréversible, diffusif) est du second ordre car le temps de convergence τ de la fraction f_a diverge à l'approche de la transition, voir figure 1.8B.

Ce modèle très simple reproduit très bien les observations expérimentales, mais le résultat est finalement très étonnant. En effet, l'obtention d'un état réversible est contre-intuitif, car les interactions entre les particules (les collisions) ne sont pas réversibles et aucun ingrédient hydrodynamique n'est ajouté au modèle. De plus, celui-ci ne fait aucun lien avec la nature chaotique de la dynamique des particules relatées dans [21].

Je conclus finalement cette section en relatant un résultat récent de Xu et Schwarz [24]. Ces derniers montrent numériquement et par un argument de type champ moyen, que la prise en compte des collisions à trois corps conduit forcément à une transition discontinue (du premier ordre). Or dans un système concentré tel que celui de [21], les collisions à trois corps ne sont surement pas marginales.

1.3.2 Echo dans un réseau unidimensionnel de boucles

En 2007, Fuerstman *et al* ont mis en place un autre type d'expérience d'écho hydrodynamique [23]. Celle-ci est effectuée dans une géométrie unidimensionnelle comprenant une boucle, à savoir un canal se séparant en deux chemins se reconnectant en aval, voir figure 1.9A et B. Un train de taille finie de gouttes uniformément séparées est injecté dans le système. Ces gouttes d'eau voyageant dans un écoulement d'hexadécane sont créées en amont grâce à une jonction en T [25].

Cette étude peut sembler a priori triviale au vue des concentrations utilisées car les interactions hydrodynamiques sont à très courte portée dans des canaux unidimensionnels en raison de l'écrantage exponentiel du au confinement [26]. En revanche les gouttes interagissent de manière effective au passage de la boucle, modifiant les distances inter-particules initiales et donnant lieu à une dynamique

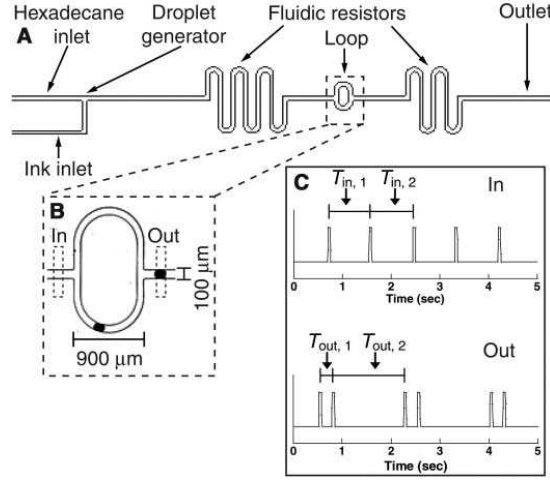


FIGURE 1.9: A. Schéma du système expérimental de [23]. B. Zoom sur l'élément essentiel du système : la boucle. Celle-ci est asymétrique, les longueurs des 2 branches étant 1.98mm et 1.78mm. C. Haut : temps de passage des gouttes à l'entrée de la boucle, le train est uniformément distribué. Bas : temps de passage des gouttes en sortie de la boucle : le train de gouttes est maintenant bipériodique.

complexe de trafic [27, 28, 29, 30, 31, 32]. Ceci est dû à deux règles très robustes observées expérimentalement : (i) une particule déformable (goutte, bulle) arrivant à une bifurcation emprunte toujours le chemin de débit le plus important [31], (ii) la présence d'une particule dans un canal bouche partiellement celui-ci diminuant le débit de l'écoulement. Ainsi les gouttes empruntent tour à tour les 2 branches de la boucle, leurs vitesses dans celles-ci dépendant du taux d'occupation total de la boucle. Le motif initial du train est alors modifié pour prendre une forme multipériodique ou encore chaotique (arrangement aléatoire sans symétrie particulière) en fonction de la distance inter-particule initiale, voir figure 1.9C pour un exemple de motif bipériodique obtenu.

L'expérience d'écho consiste à envoyer un train de gouttes uniformément séparées à travers la boucle puis à inverser l'écoulement afin de refaire passer le train dans l'autre sens. Le résultat est encore une fois très surprenant : les gouttes reprennent leurs positions initiales après l'aller-retour, voir le diagramme spatio-temporel figure 1.10A. Le train de gouttes exhibent donc une dynamique réversible.

De plus, en exploitant l'invariance par renversement temporel, les auteurs transforment l'expérience d'écho en expérience de trafic. Ils envoient cette fois le train de gouttes au travers de deux boucles identiques placées en série. Au passage de la première boucle, le signal défini par les intervalles de temps entre chaque goutte est codé, voir figure 1.10C et E. Celui-ci est alors décodé à la

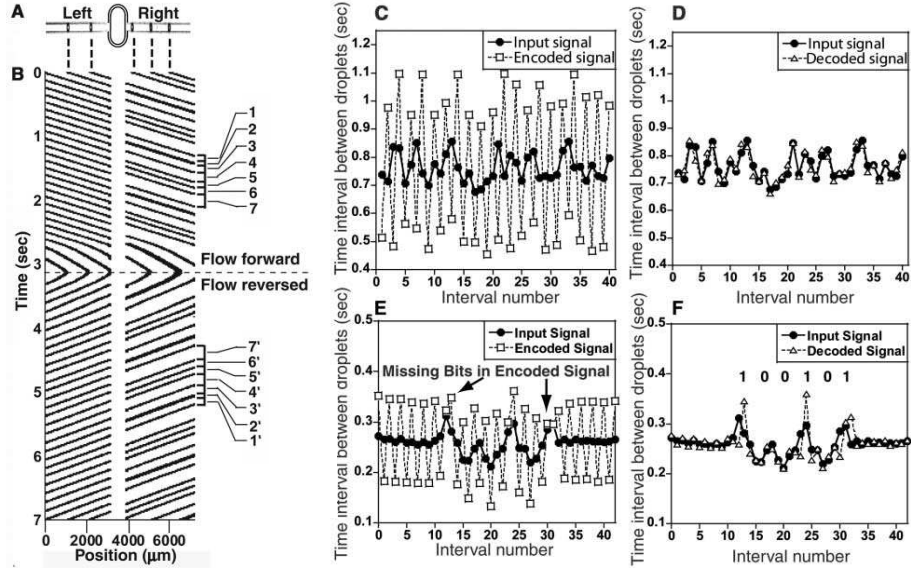


FIGURE 1.10: A et B. Diagramme spatio-temporel de la dynamique d'un train de gouttes uniformément distribué initialement lors d'une expérience d'écho au travers d'une boucle. C. Signal initial et signal codé au passage de la première boucle. D. Signal initial et signal décodé au passage de la deuxième boucle. E. et F. Mêmes tracés que C. et D. pour une distance inter-particule initiale inférieure.

sortie de la deuxième boucle : les gouttes reprennent leur espacement initial, voir figure 1.10D et F. De façon très remarquable, le bruit sur le signal initial est lui aussi décodé !

Contrairement à ce que semblaient penser initialement les auteurs de [23], nous montrerons que ces résultats sont en fait beaucoup plus étonnants qu'il n'y paraît. En effet, nous verrons que la règle de trafic à l'entrée de la boucle induit par nature une forte non-linéarité à la dynamique brisant la symétrie par renversement temporel. Encore une fois, bien que les interactions entre les particules soient irréversibles, le système est caractérisé par une dynamique globale réversible.

1.3.3 Autres exemples d'expériences d'écho en matière molle

Inspirées par les résultats du groupe de Pine [21], de nombreuses études se sont focalisées ces dernières années sur cette transition irréversible/réversible [33, 34, 35, 36, 37, 38, 39, 40, 41, 42, 43, 44]. Qu'elles concernent des systèmes amorphes [40, 42, 43], le phénomène de "plastic depinning" [35] ou relié à cela

la dynamique de vortex cisailés dans les supraconducteurs [38, 39, 34], la dynamique de défauts dans les cristaux [41] ou encore la dynamique de suspensions semi-concentrées sphériques [33, 36, 44] ou asymétriques [37], chacune de ces études présente une transition du second ordre entre un état réversible et un état irréversible avec la divergence d'un temps caractéristique à l'approche de cette transition. De plus, la dynamique microscopique décrivant l'évolution de tous ces systèmes est intrinsèquement non-réversible.

Finalement, aucune de ces études ne met en évidence d'auto-organisation structurale du système. Génériquement, il est fait référence à une organisation aléatoire, "random organization", qui suggère que le système auto-organise sa dynamique sans se doter de structure spatiale. Cette dénomination est aussi a priori justifiée du fait que, dans un système cisailé, il existe une infinité de configurations structurales conduisant à une dynamique gelée, peu importe l'amplitude du cisaillement. Il suffit de placer les particules alignées dans la direction du cisaillement. Evidemment, lorsque l'état initial est homogène un tel état final est très largement improbable. Mais comme l'a souligné D. Frenkel quelques mois après la publication de [22], "how random is the state of random organization?" [45]. En effet, au cours des collisions successives les particules s'arrangent sûrement très localement de manière relativement ordonnée.

1.4 Objectifs et principaux résultats de la thèse

1.4.1 Objectifs

Le principal objectif de cette thèse est de comprendre comment un système de particules en interactions hydrodynamiques perd collectivement la réversibilité de ses trajectoires lorsqu'il est forcé périodiquement. Pour y parvenir, nous avons mis en place 2 expériences quantitatives modèles.

Le premier système consiste en une émulsion monodisperse de fraction surfacique contrôlée placée dans une chambre microfluidique bidimensionnelle. Cette expérience donne accès à la dynamique de centaines de milliers de gouttes en interactions hydrodynamiques sur des temps longs. Elle permet de donner un sens à la notion de "random organization" présentée à la section 1.3 et d'identifier une origine structurale à la perte de réversibilité macroscopique.

La seconde expérience consiste en l'étude du trafic de gouttes dans un réseau unidimensionnel de boucles fluidiques. Complétée par des études numériques et analytiques, elle permet de montrer que ces expériences de trafic ne peuvent pas être utilisées pour mimer des forçages périodiques dans le temps. En se concentrant sur un système de petite taille (3 gouttes) nous montrons que la dynamique de trafic s'auto-organise asymptotiquement pour donner le premier exemple de système hydrodynamique en interaction dont la dynamique est hamiltonienne.

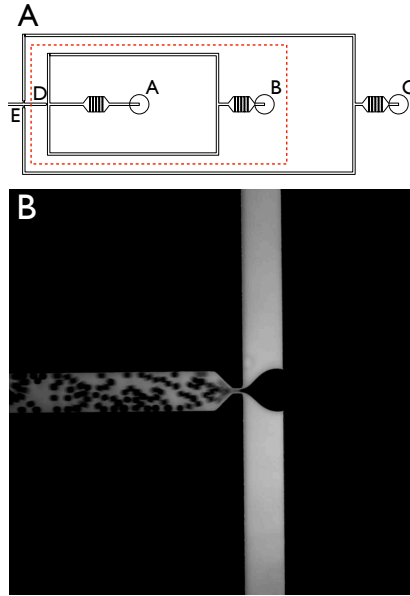


FIGURE 1.11: A. Schéma à l'échelle du générateur de gouttes utilisé pour les expériences d'écho. Largeur des canaux : $w = 200 \mu\text{m}$. Le rectangle en ligne discontinue rouge constitue le Flow-Focusing. Les canaux extérieurs constituent le dilueur. La phase dispersée est injectée par l'entrée A, tandis que la phase continue est injectée par les entrées B et C. Les gouttes sont produites au niveau de la constriction D et la dilution s'effectue au niveau de la jonction E. B. Photographie du Flow-Focusing lors de la création d'une émulsion monodisperse.

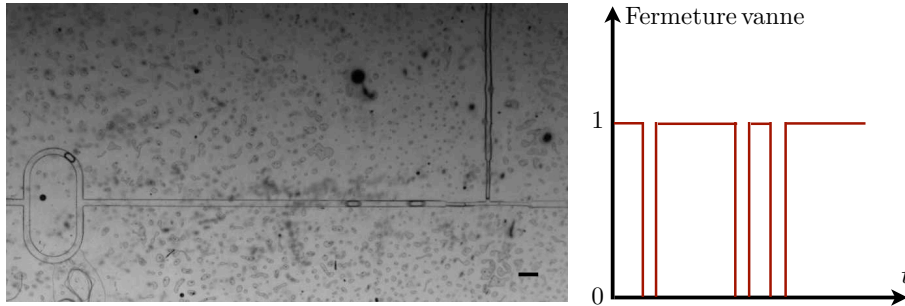


FIGURE 1.12: Illustration de la versatilité du système de gouttes à la demande. 3 gouttes de même taille sont créées à la jonction en T en appliquant une séquence d'ouverture et de fermeture à la vanne pneumatique. Les distances inter-particules peuvent être modifiées sans changement de la taille des gouttes. Barre d'échelle : $300\ \mu\text{m}$ - R. Jeanneret, 2010.

1.4.2 Principaux résultats

Outils microfluidiques pour l'élaboration de systèmes modèles

Toutes les études expérimentales conduites pendant ces 3 ans utilisent des outils microfluidiques. Outre les techniques de fabrication de puces microfluidiques devenues très communes, les méthodes développées pendant cette thèse concernent principalement la création de gouttes micrométriques. La nature de l'expérience d'écho et de l'expérience de trafic n'étant pas du tout la même, les techniques utilisées pour la création de gouttes sont très différentes. La première nécessite en effet, la création d'émulsions monodisperses reproductibles ayant une densité surfacique contrôlée, alors que la seconde exige la fabrication de seulement 3 gouttes de même taille avec des distances inter-particules indépendantes les unes des autres.

Afin de produire une émulsion reproductible de gouttes, nous avons fait le choix d'utiliser une géométrie de type Flow-Focusing [46] à laquelle est rajouté un module de dilution afin de contrôler la fraction surfacique, voir figure 1.11A. Ce dispositif permet de faire varier cette fraction surfacique de $\sim 10\%$ à $\sim 50\%$ sans modifier la taille des gouttes.

La technique utilisée pour fabriquer seulement 3 gouttes de même taille est celle de Drop-on-Demand [47]. Cette méthode utilise des vannes microfluidiques placées sur le trajet de la phase dispersée permettant de couper et de rétablir le débit afin d'effectuer un contrôle actif sur la formation des gouttes. Le temps d'ouverture de la vanne détermine la taille des gouttes, le temps de fermeture fixe quant à lui l'espacement entre les gouttes, voir figure 1.12. Ce système très versatile permet la création de n'importe quel motif de gouttes.

Toutes les techniques utilisées pendant ma thèse afin de construire les systèmes microfluidiques modèles sont décrites dans le chapitre 2.

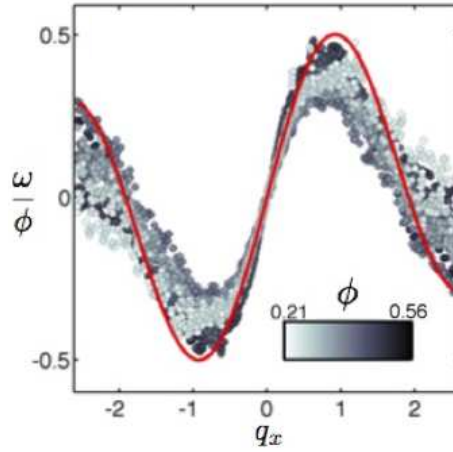


FIGURE 1.13: Relations de dispersion renormalisées des ondes de densité. Cercles pleins : données expérimentales, Ligne rouge : prédiction théorique. La prédiction théorique se superpose sans aucun paramètre ajustable.

Fluctuations de densité d'une émulsion bidimensionnelle simplement advectée

Le dispositif élaboré pour l'expérience d'écho (voir section 2.3.1) a d'abord été validé grâce à un travail collaboratif au sein de notre groupe de recherche. Ce travail apporte une réponse quantitative au problème de propagation d'ondes de densité lorsqu'une émulsion confinée est simplement advectée par un écoulement de liquide. Ce phénomène avait été reporté pour la première fois par le groupe de Bar-Ziv [48, 49, 26]. Une théorie cinétique prenant en compte les interactions hydrodynamiques entre les gouttes ainsi que le volume exclu de celles-ci a été développée rendant compte de manière quantitative des observations expérimentales, voir figure 1.13.

Ma contribution à ce travail concerne exclusivement le design du dispositif ainsi que la réalisation des expériences avec Nicolas Desreumaux. L'analyse des données a été conduite par ce dernier et la théorie a été développée conjointement par Nicolas Desreumaux et Jean-Baptiste Caussin. De plus, j'ai étudié en détail la structure statique de ces émulsions au travers de la fonction de corrélation de paire $g(r)$ afin de comparer les structures obtenues lors de l'expérience d'écho.

La présentation détaillée de ce travail fait l'objet du chapitre 3.

Echo de Loschmidt hydrodynamique

Dans ce travail de recherche, une émulsion monodisperse bidimensionnelle de gouttes sphériques est forcée par un écoulement sinusoïdal. Les gouttes interagissent principalement via un couplage réversible.

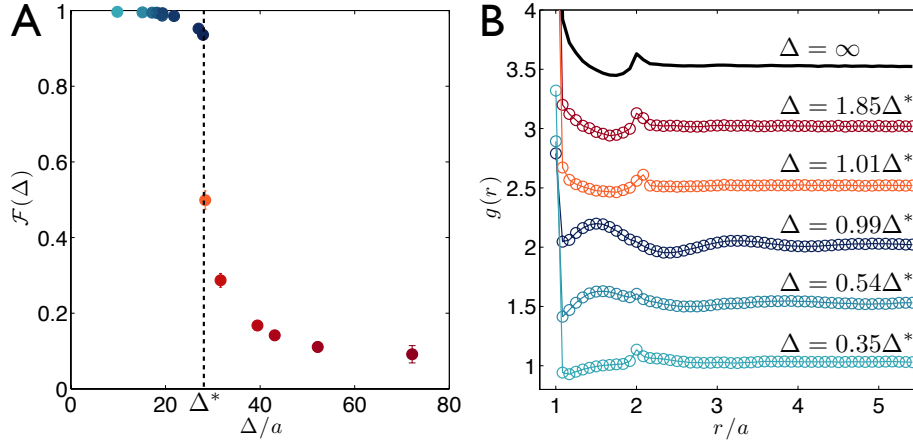


FIGURE 1.14: A. Evolution de la fidélité \mathcal{F} en fonction de l'amplitude Δ . Cette quantité chute brusquement à Δ^* mettant en évidence une transition de phase du premier ordre. B. Fonction de corrélation de paire $g(r)$ pour différentes amplitudes en deçà et au delà de la transition. Le système s'auto-organise structurellement en dessous de Δ^* afin de protéger géométriquement la réversibilité.

Traditionnellement, la réversibilité dans ce type d'expérience est quantifiée via un coefficient de diffusion sur la dynamique stroboscopée [21, 22, 36, 44]. Cette diffusivité est mesurée en étudiant le déplacement quadratique moyen des particules. Ce type de mesure est donc très dépendant de la précision expérimentale et définir un seuil d'irréversibilité n'est alors pas évident.

Afin de minimiser l'impact de la précision expérimentale, une nouvelle mesure de la réversibilité de la dynamique est introduite. Celle-ci est basée sur un critère topologique : une goutte a, sur un cycle, un mouvement considéré comme réversible si celle-ci revient à la fin du cycle dans la cellule de Voronoï qu'elle occupait au début de ce même cycle. Ce critère correspond en effet à la contrainte la plus faible sur les trajectoires des gouttes permettant de les tracker sans ambiguïté sur le film stroboscopé. On définit alors la fidélité \mathcal{F} correspondant, à la fin d'un cycle, à la fraction de particules revenant dans la cage de Voronoï qu'elles occupaient au début du cycle.

L'expérience montre que l'évolution de cette quantité en fonction de l'amplitude de l'écoulement oscillant Δ est discontinue : à une amplitude très bien déterminée Δ^* , \mathcal{F} chute brusquement, voir figure 1.14A. Ce comportement met en évidence une transition de phase du premier ordre entre un état réversible à faible forçage et un état irréversible à grande amplitude.

De plus, en deçà de la transition, il est montré par l'étude de la fonction de corrélation de paire $g(r)$ que l'émulsion s'auto-organise structurellement. Le système passe d'un état de type gaz de sphères dures avec une légère attraction pour les très faibles amplitudes à un état de type liquide de sphères molles juste

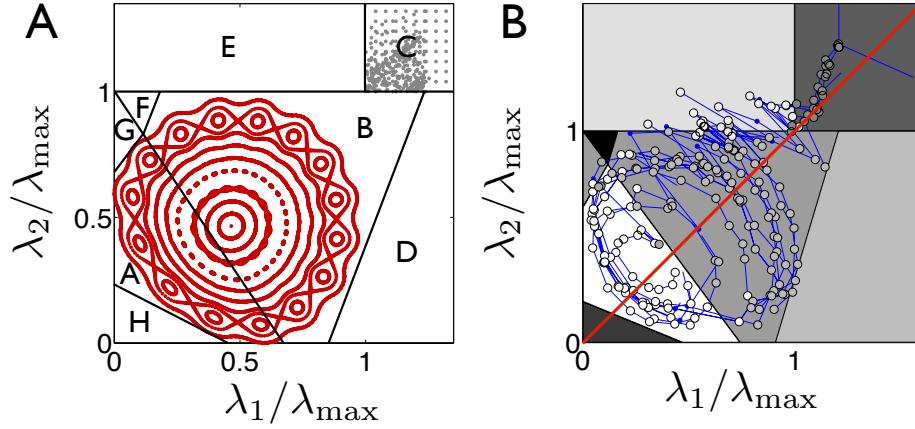


FIGURE 1.15: A. Exemple de trajectoires asymptotiques dans la limite étudiée. Pour ce jeu de paramètres de contrôle la dynamique est quasi-périodique. B. Trajectoires expérimentales obtenues dans un système de 20 boucles en série : le système converge bien vers un attracteur où la dynamique est quasi-périodique.

en dessous de la transition, voir figure 1.14B. Cet état de type gaz de sphères dures correspond à l'état initial commun à toutes les amplitudes. C'est l'état observé également au dessus de la transition.

Cette étude montre un lien direct entre réversibilité et auto-organisation structurelle : à l'approche de la transition les gouttes s'écartent de plus en plus les unes des autres afin de minimiser les interactions non-réversibles et protéger la réversibilité macroscopique. La perte simultanée d'auto-organisation et de la réversibilité est expliquée par un processus de perte de mémoire appuyé par la mesure du plus grand exposant de Lyapunov de la dynamique.

Ce travail est présenté dans le chapitre 4.

Trafic de gouttes dans un réseau microfluidique de boucles

Cette étude explore en détail la dynamique asymptotique de 3 gouttes dans un réseau infini de boucles. Nous nous sommes focalisés sur des systèmes de boucles très peu asymétriques (i.e. longueurs des 2 branches proches) et des gouttes relativement grosses (i.e. qui bouchent beaucoup les canaux). On étudie dans cette limite le système dynamique défini par $[\lambda_1(n+1), \lambda_2(n+1)] = \mathcal{S}[\lambda_1(n), \lambda_2(n)]$, où λ_1 et λ_2 sont les distances entre les 3 particules, \mathcal{S} est la fonction représentant la boucle modifiant ces distances et n est le numéro de la boucle.

Il est montré numériquement et analytiquement que le système converge dans une région de l'espace des phases où la dynamique est hamiltonienne et réversible, voir figure 1.15A. De plus, en modifiant les paramètres de contrôle, le système passe continûment d'une dynamique régulière à une dynamique chaotique.

tique.

Finalement, cette étude est appuyée par des expériences microfluidiques reproduisant très bien qualitativement les observations numériques, voir figure 1.15B.

Ces travaux de recherche sont détaillés dans le chapitre 5.

1.5 Bibliographie

- [1] Taylor, G. I. National Committee for Fluid Mechanics Films (1966). URL <http://web.mit.edu/hml/ncfmf.html>. Education Development Center, Newton, MA.
- [2] Purcell, E. Life at low Reynolds number. *American Journal of Physics* **45**, 3–11 (1977).
- [3] Lauga, E. & Powers, T. R. The hydrodynamics of swimming microorganisms. *Reports on Progress in Physics* **72**, 096601 (2009).
- [4] Lauga, E. & Bartolo, D. No many-scallop theorem : Collective locomotion of reciprocal swimmers. *Physical Review E* **78**, 030901 (2008).
- [5] Pushkin, D. O., Shum, H. & Yeomans, J. M. Fluid transport by individual microswimmers. *Journal of Fluid Mechanics* **726**, 5–25 (2013).
- [6] Bennett, R. R. & Golestanian, R. Emergent Run-and-Tumble Behavior in a Simple Model of Chlamydomonas with Intrinsic Noise. *Physical Review Letters* **110**, 148102 (2013).
- [7] Brumley, D. R., Polin, M., Pedley, T. J. & Goldstein, R. E. Hydrodynamic Synchronization and Metachronal Waves on the Surface of the Colonial Alga Volvox carteri. *Physical Review Letters* **109**, 268102 (2012).
- [8] Coq, N., du Roure, O., Marthelot, J., Bartolo, D. & Fermigier, M. Rotational dynamics of a soft filament : Wrapping transition and propulsive forces. *Physics of Fluids* **20**, 051703 (2008).
- [9] Aref, H. Stirring by chaotic advection. *Journal of Fluid Mechanics* **143**, 1 (1984).
- [10] Chaiken, J., Chevray, R., Tabor, M. & Tan, Q. M. Experimental Study of Lagrangian Turbulence in a Stokes Flow. *Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences* **408**, 165–174 (1986).
- [11] Chien, W.-L., Rising, H. & Ottino, J. M. Laminar mixing and chaotic mixing in several cavity flows. *Journal of Fluid Mechanics* **170**, 355 (1986).
- [12] Gouillart, E., Dauchot, O. & Thiffeault, J.-L. Measures of mixing quality in open flows with chaotic advection. *Physics of Fluids* **23**, 013604 (2011).
- [13] Aref, H. & Jones, S. W. Enhanced separation of diffusing particles by chaotic advection. *Physics of Fluids A : Fluid Dynamics* **1**, 470 (1989).
- [14] Sundararajan, P., Kirtland, J. D., Koch, D. L. & Stroock, A. D. Impact of chaos and Brownian diffusion on irreversibility in Stokes flows. *Physical Review E* **86**, 046203 (2012).

- [15] Goussev, A., Jalabert, R. A., Pastawski, H. M. & Wisniacki, D. Loschmidt Echo. *ArXiv e-prints* (2012). 1206.6348.
- [16] Peres, A. Stability of quantum motion in chaotic and regular systems. *Physical Review A* **30**, 1610–1615 (1984).
- [17] Boffetta, G., Cencini, M., Falcioni, M. & Vulpiani, A. Predictability : a way to characterize complexity. *Physics reports* **356**, 367–474 (2002).
- [18] Eckhardt, B. Echoes in classical dynamical systems. *Journal of Physics A : Mathematical and General* **36**, 371–380 (2003).
- [19] Veble, G. & Prosen, T. Classical Loschmidt echo in chaotic many-body systems. *Physical Review E* **72**, 025202 (2005).
- [20] Gorin, T., Prosen, T., Seligman, T. H. & Žnidarič, M. Dynamics of Loschmidt echoes and fidelity decay. *Physics Reports* **435**, 33–156 (2006).
- [21] Pine, D. J., Gollub, J. P., Brady, J. F. & Leshansky, A. M. Chaos and threshold for irreversibility in sheared suspensions. *Nature* **438**, 997–1000 (2005).
- [22] Corté, L., Chaikin, P. M., Gollub, J. P. & Pine, D. J. Random organization in periodically driven systems. *Nature Physics* **4**, 420–424 (2008).
- [23] Fuerstman, M. J., Garstecki, P. & Whitesides, G. M. Coding/decoding and reversibility of droplet trains in microfluidic networks. *Science (New York, N.Y.)* **315**, 828–32 (2007).
- [24] Xu, S.-L.-Y. & Schwarz, J. M. Contact processes in crowded environments. *Physical Review E* **88**, 052130 (2013).
- [25] Thorsen, T., Roberts, R. W., Arnold, F. H. & Quake, S. R. Dynamic Pattern Formation in a Vesicle-Generating Microfluidic Device. *Physical Review Letters* **86**, 4163–4166 (2001).
- [26] Beatus, T., Bar-Ziv, R. H. & Tlusty, T. The physics of 2D microfluidic droplet ensembles. *Physics Reports* **516**, 103–145 (2012).
- [27] Engl, W., Roche, M., Colin, A., Panizza, P. & Ajdari, A. Droplet Traffic at a Simple Junction at Low Capillary Numbers. *Physical Review Letters* **95**, 1–4 (2005).
- [28] Schindler, M. & Ajdari, A. Droplet Traffic in Microfluidic Networks : A Simple Model for Understanding and Designing. *Physical Review Letters* **100**, 1–4 (2008).
- [29] Jousse, F., Farr, R., Link, D., Fuerstman, M. & Garstecki, P. Bifurcation of droplet flows within capillaries. *Physical Review E* **74**, 1–6 (2006).
- [30] Sessoms, D. *et al.* Droplet motion in microfluidic networks : Hydrodynamic interactions and pressure-drop measurements. *Physical Review E* **80**, 1–10 (2009).
- [31] Belloul, M., Engl, W., Colin, A., Panizza, P. & Ajdari, A. Competition between Local Collisions and Collective Hydrodynamic Feedback Controls Traffic Flows in Microfluidic Networks. *Physical Review Letters* **102**, 194502 (2009).

- [32] Sessoms, D. A., Amon, A., Courbin, L. & Panizza, P. Complex Dynamics of Droplet Traffic in a Bifurcating Microfluidic Channel : Periodicity, Multistability, and Selection Rules. *Physical Review Letters* **105**, 154501 (2010).
- [33] Reichhardt, C. & Olson, C. Colloidal Dynamics on Disordered Substrates. *Physical Review Letters* **89**, 078301 (2002).
- [34] Mangan, N. & Reichhardt, C. Reversible to Irreversible Flow Transition in Periodically Driven Vortices. *Physical Review Letters* **100**, 187002 (2008).
- [35] Reichhardt, C. & Reichhardt, C. J. O. Random Organization and Plastic Depinning. *ArXiv e-prints* (2009). 0812.3425.
- [36] Metzger, B. & Butler, J. Irreversibility and chaos : Role of long-range hydrodynamic interactions in sheared suspensions. *Physical Review E* **82**, 1–4 (2010).
- [37] Franceschini, A., Filippidi, E., Guazzelli, E. & Pine, D. J. Transverse alignment of fibers in a periodically sheared suspension : an absorbing phase transition with a slowly varying control parameter. *Physical review letters* **107**, 250603 (2011).
- [38] Okuma, S., Tsugawa, Y. & Motohashi, a. Transition from reversible to irreversible flow : Absorbing and depinning transitions in a sheared-vortex system. *Physical Review B* **83**, 012503 (2011).
- [39] Okuma, S., Kawamura, Y. & Tsugawa, Y. Irreversibility and Dislocation in Periodically Sheared Vortex Matter. *Journal of the physical society of Japan* **81**, 35–40 (2012).
- [40] Slotterback, S. *et al.* Onset of irreversibility in cyclic shear of granular packings. *Physical Review E* **85**, 021309 (2012).
- [41] Zhou, C., Reichhardt, C. J. O., Reichhardt, C. & Beyerlein, I. Random Organization in Periodically Driven Gliding Dislocations. *ArXiv e-prints* (2013). 1309.4107.
- [42] Keim, N. C. & Arratia, P. E. Yielding and microstructure in a 2D jammed material under shear deformation. *Soft Matter* **9**, 6222–6225 (2013).
- [43] Regev, I., Lookman, T. & Reichhardt, C. Chaos, Reversibility and Yield in Amorphous Solids Under Periodic Shear. *ArXiv e-prints* (2013). 1301.7479.
- [44] Metzger, B., Pham, P. & Butler, J. E. Irreversibility and Chaos : Role of Lubrication Interactions in Sheared Suspensions 1–4 (2013).
- [45] Frenkel, D. Ordered chaos. *Nature Physics* **4**, 345–346 (2008).
- [46] Anna, S. L., Bontoux, N. & Stone, H. A. Formation of dispersions using ”flow focusing” in microchannels. *Applied Physics Letters* **82**, 364 (2003).
- [47] Galas, J.-C., Bartolo, D. & Studer, V. Active connectors for microfluidic drops on demand. *New Journal of Physics* **11**, 075027 (2009).
- [48] Beatus, T., Tlusty, T. & Bar-Ziv, R. Phonons in a one-dimensional microfluidic crystal. *Nature Physics* **2**, 743–748 (2006).

- [49] Beatus, T., Tlusty, T. & Bar-Ziv, R. Burgers Shock Waves and Sound in a 2D Microfluidic Droplets Ensemble. *Physical Review Letters* **103**, 114502 (2009).

CHAPITRE 2

Design des expériences microfluidiques

Les travaux de recherche effectués pendant ces 3 dernières années sont focalisés sur l'étude de la dynamique de particules couplées via des interactions hydrodynamiques et évoluant dans des milieux confinés. Je me suis concentré sur 2 types de systèmes. Le premier système s'intéresse à la dynamique d'un nombre restreint de particules évoluant dans un réseau unidimensionnel de boucles (voir chapitre 5). Le second système permet l'étude quantitative de la dynamique d'un grand nombre de particules transportées dans une géométrie bidimensionnelle. Sur ce second système, 2 études ont été conduites : (i) une expérience d'advection simple d'une émulsion bidimensionnelle permettant l'investigation quantitative de la propagation d'ondes de densité (voir chapitre 3), (ii) une expérience dite d'écho où l'on applique un écoulement sinusoïdal à la même émulsion bidimensionnelle afin de sonder et de comprendre l'émergence d'une dynamique macroscopique irréversible quand bien même les particules sont uniquement couplées via des interactions réversibles (voir chapitre 4).

Les 2 systèmes sont donc de nature très différentes car le nombre de particules impliquées varie de $N = 3$ (étude dans les réseaux de boucles) à $N \sim 10^5$ (étude de la propagation d'ondes et expérience d'écho). Pour chacune des géométries étudiées, nous avons fait le choix dès le début d'utiliser comme particules des gouttes fabriquées in-situ. En effet, outre les raisons physiques sous-jacentes aux divers problèmes abordés pour ce choix (voir chapitres suivants), les techniques de création de gouttes micrométriques sont aujourd'hui très bien maîtrisées, même si pas encore complètement comprises d'un point de vue fondamental. En revanche l'approche pour produire un nombre contrôlé et faible de gouttes n'est pas du tout la même que pour créer une émulsion. Par conséquent les techniques mises en place afin de mener à bien ces recherches ont été très différentes pour ces 2 systèmes. Les 2 procédés de production de gouttes sont détaillés et expliqués



FIGURE 2.1: Sections schématiques d'un dispositif en PDMS. Le canal se gonfle lorsque la différence de pression imposée est positive alors qu'il se contracte si la différence de pression est négative.

dans la section 2.2.

De plus, lors de la conception des expériences s'est posée la question du choix des matériaux à utiliser pour la fabrication des dispositifs microfluidiques. Les matériaux les plus utilisés à ces fins dans le monde académique sont des élastomères, en particulier le PolyDiMethylSiloxane (PDMS) car il possède les propriétés nécessaires à un grand nombre d'études. Cependant le caractère élastique du PDMS peut s'avérer être un inconvénient pour certaines expériences, en particulier celles présentées dans cette thèse où les conditions expérimentales nécessitaient l'utilisation de matériaux ne pouvant se déformer en présence d'un écoulement. Pour cela, j'ai été amené à maîtriser une technique de fabrication de puces microfluidiques en polymère rigide développée il y a quelques années par Bartolo *et al* [1]. La présentation de cette technique fait l'objet de la première section de ce chapitre.

Dans un deuxième temps, je me focalise sur les particularités de l'expérience d'écho, de l'optimisation du design de celle-ci au contrôle des écoulements.

Finalement, les études relatives dans ce manuscrit demandent de gérer de grandes quantités de données, de l'acquisition de celles-ci à l'analyse finale. En particulier, le tracking d'un grand nombre de particules sur des temps longs peut s'avérer délicat. Je détaille donc dans la dernière section du chapitre les méthodes utilisées pour la détection et le tracking de mes expériences d'écho ainsi que les problèmes survenus lors de l'acquisition des films.

2.1 Stickers microfluidiques : méthode et avantages

Comme évoqué dans l'introduction de ce chapitre, le PDMS présente de nombreux avantages par rapport à d'autres matériaux pour beaucoup d'applications microfluidiques. Le PDMS est notamment perméable au gaz ce qui permet de conduire plus aisément des recherches sur des organismes vivants en contrôlant la quantité d'air dans le milieu. De plus, d'un point de vue optique, son autofluorescence est faible comparée à d'autres plastiques ce qui en fait un candidat très approprié pour des études en fluorescence [2]. Un troisième avantage du PDMS est sa forte déformabilité. En effet, contrôler l'écoulement de fluides à des échelles micrométriques peut nécessiter l'intégration d'éléments actifs dans

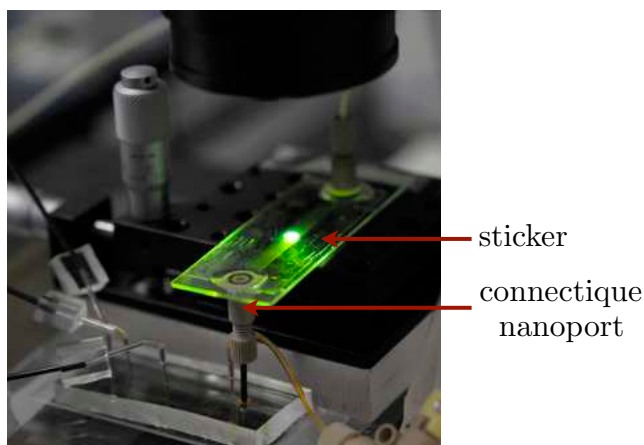


FIGURE 2.2: Photographie d'un sticker microfluidique - R. Jeanneret, 2012.

les puces, telle que des pompes, des vannes,... [3]. Ceci est possible grâce au faible module d'Young du PDMS. C'est d'ailleurs en mettant à profit cette propriété que j'ai mis en place des générateurs de gouttes à la demande basés sur [4] et décrits dans la partie 2.2.2.

Ce dernier argument en faveur du PDMS peut aussi s'avérer être un inconvénient pour de nombreuses études. En effet, en raison de la déformabilité du PDMS, la géométrie des canaux est une fonction des contraintes mécaniques (pression) appliquées au système, ce qui change les conditions aux limites du problème. Un cas extrême étant l'inversion du gradient de pression à travers le canal d'étude. Lorsqu'une différence de pression positive est appliquée, le canal se courbe vers l'extérieur, alors qu'il se courbe vers l'intérieur si une différence de pression négative est imposée, voir figure 2.1. Ceci implique que l'écoulement n'a pas le même profil pour une différence de pression positive et négative. Ce problème est donc rédhibitoire pour mener à bien une expérience invoquant un écoulement oscillant telle que l'expérience d'écho (voir chapitre 4). Outre cet exemple très particulier issu de ma propre expérience, cette déformabilité importante empêche toutes études sur des fluides visqueux ou complexes (rhéologie notamment).

Afin de pallier ce problème de déformabilité des dispositifs en PDMS, j'ai été amené à fabriquer d'autres types de puces microfluidiques construites dans un matériau rigide, les stickers microfluidiques. Un exemple d'un tel dispositif est présenté figure 2.2. Cette technologie a été développée par Bartolo *et al* en 2007 [1]. Je vais, dans les parties suivantes, décrire tout d'abord le protocole de fabrication que j'ai utilisé, puis montrer quantitativement les avantages que peuvent présenter ces types de dispositifs par rapport au PDMS pour mes expériences.

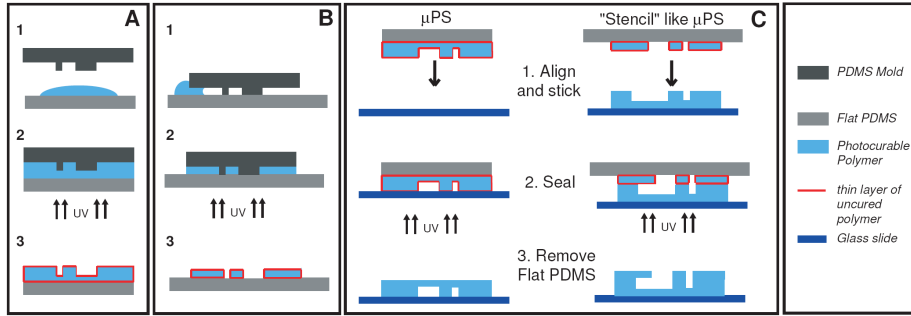


FIGURE 2.3: Protocole de fabrication des stickers microfluidiques à partir du moule en PDMS. Schéma extrait de [1].

2.1.1 Protocole de fabrication des stickers microfluidiques

Je présente dans cette partie le protocole de fabrication des stickers à partir de la résine photoréticulable NOA 81 (Northland Optical Adhesive, résine à base de thiolène).

Obtention d'un moule primaire

Avant de fabriquer un dispositif de type sticker à proprement parler, un moule primaire en PDMS des canaux voulus doit être créé. Ce timbre en PDMS est obtenu par réplcation d'un moule sur wafer de silicium. Ce dernier est lui-même obtenu par méthode classique de photolithographie douce d'une résine photoréticulable (par exemple résine SU-8).

Création du "micro-patterned sticker"

Un "micro-patterned sticker" (μ PS), d'après les termes de [1], est l'élément du futur dispositif microfluidique constitué de la colle photoréticulable à proprement parler. L'obtention d'un μ PS peut se faire de deux façons selon les besoins. Ces 2 techniques A et B sont schématisées figure 2.3A et 2.3B respectivement.

Pour la méthode A, une goutte de quelques millilitres de résine photoréticulable est étalée sur un morceau de PDMS plat. Le moule en PDMS est ensuite placé sur cette goutte de résine. Celle-ci est alors écrasée entre les 2 moules en PDMS et s'étale jusqu'à une position d'équilibre. Des bulles d'air peuvent éventuellement être piégées dans la résine pendant cette étape. Les moules en PDMS sont donc au préalable placés dans des cloches à vide afin d'en évacuer l'air : le PDMS étant perméable au gaz, les bulles piégées dans la résine s'échappent ensuite d'elles mêmes en une dizaine de minutes généralement.

Pour la méthode B, la première étape est de mettre en contact le moule en PDMS et le PDMS plat. La résine est alors déposée sur un des bords du système. L'espacement entre les 2 moules en PDMS étant de quelques dizaines

de microns, la résine va avancer à l'intérieur, entraînée par les forces capillaires, et ainsi remplir le vide. Les régions où les 2 timbres en PDMS sont en contact seront alors dépourvus de résine. Cette méthode permet de fabriquer des μ PS étant ouverts sur les surfaces inférieure et supérieure, ce qui n'est pas le cas avec la méthode A. Elle sera utilisée par exemple pour créer des stickers ayant des surfaces inférieure/supérieure en verre plutôt qu'en résine, ou encore pour fabriquer des dispositifs multi-couches ayant des géométries tridimensionnelles.

Une fois que l'on a obtenu l'ensemble PDMS plat/résine/moule en PDMS par l'une ou l'autre méthode, le tout est placé sous une lampe UV (lampe Hamamatsu Lightningcure LC8, $\lambda = 365$ nm, intensité : 8.3 mW.cm^{-2}) et éclairé entre 1 et 10 secondes afin de réticuler partiellement la résine. Les temps d'exposition peuvent varier légèrement selon l'épaisseur du μ PS.

Collage et fermeture du μ PS

La réaction de réticulation de la résine est inhibée par l'oxygène. Celui-ci est présent en permanence dans le PDMS en raison de sa perméabilité aux gaz. Ainsi lors de la première exposition aux UV, la résine ne réticule qu'en volume et une fine couche liquide reste sur toute la surface du μ PS, voir lignes rouges figure 2.3. A ce stade le moule en PDMS est décollé, la résine restant sur le PDMS plat.

Afin de rendre le dispositif étanche, l'ensemble PDMS plat/ μ PS est déposé sur une lame ou lamelle de verre préalablement percée, grâce à une sableuse, aux endroits où les fluides seront injectés, voir figure 2.3C à gauche. Cette étape demande beaucoup de précision pour aligner les trous dans la lame de verre avec les entrées de fluides prévues dans le μ PS. La fine couche de résine non réticulée permet alors le collage sur cette lame en exposant l'ensemble plusieurs dizaines de secondes aux UV (lampe Hamamatsu Lightningcure LC8, $\lambda = 365$ nm, intensité : 26 mW.cm^{-2}). En effet, le verre n'étant pas perméable au gaz, cette fine couche va cette fois-ci réticuler et adhérer à la lame de verre. Le PDMS plat peut alors être décollé du dispositif fermé obtenu, quasiment prêt à l'emploi. Cette méthode permet de faire des dispositifs plus compliqués ayant plusieurs épaisseurs de canaux en combinant les étapes précédentes avec plusieurs moules en PDMS, comme schématisé figure 2.3C à droite.

Connectiques

Afin de pouvoir utiliser les stickers et y injecter des fluides, des connectiques doivent être ajoutées au niveau des trous faits dans la lame de verre. J'utilise pour cela des connectiques upchurch nanoport N-333 que je colle grâce à la même résine photoréticulable NOA 81, voir figure 2.2.

Contrairement à la fabrication des dispositifs en PDMS, la méthode des stickers demande une certaine maîtrise de la technique. Il faut en effet être très minutieux et chaque nouvelle géométrie à tester demande plusieurs essais. Il n'existe pas une recette magique applicable pour chaque dispositif à créer.

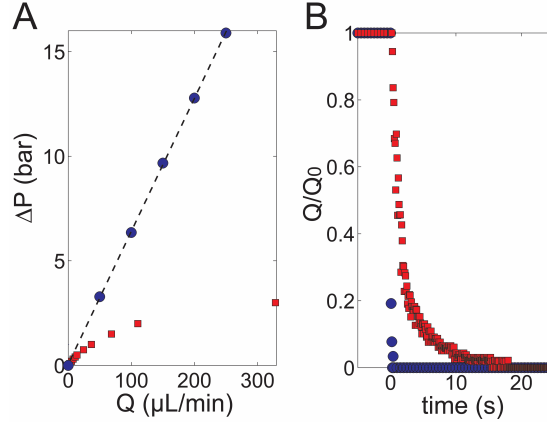


FIGURE 2.4: Courbes extraites de [1]. A. Chute de pression ΔP en fonction du débit imposé à travers deux dispositifs identiques, l'un en PDMS (carrés rouges) l'autre en NOA 81 (disques bleus). B. Evolution du débit (adimensionné par la valeur initiale) après l'arrêt brusque de la pression initiale (3 bars) à $t = 0$ pour le dispositif en PDMS (carrés rouges) et pour le dispositif en NOA 81 (disques bleus).

Notamment les temps de réticulation de la résine lors de la première étape dépendent beaucoup de la géométrie créée, de l'épaisseur du dispositif,... Mais une fois ces techniques bien maîtrisées, la fabrication des stickers devient aussi simple et rapide que celle des puces en PDMS. Et le résultat obtenu présente beaucoup d'avantages par rapport au PDMS.

2.1.2 Avantages des stickers

Le profit le plus important pour moi des stickers microfluidiques concerne leurs propriétés mécaniques. Le module d'Young de la résine réticulée est 3 ordres de grandeur plus important que celui du PDMS ($\sim \text{GPa}$), ce qui induit une parfaite rigidité des dispositifs dans des gammes de pression relativement grandes. Les auteurs de [1] ont mesuré la perte de charge dans 2 dispositifs identiques, l'un en PDMS l'autre en NOA 81, pour différents débits imposés à l'entrée (le liquide utilisé est une solution d'eau-glycérine). Les dispositifs font 2 cm de long, $200 \mu\text{m}$ de large et $16 \mu\text{m}$ de hauteur. La chute de pression mesurée en fonction du débit est représentée figure 2.4A pour les 2 types de dispositifs. Pour celui en NOA 81, la perte de charge suit une loi linéaire en fonction du débit (loi de Darcy) sur une très large gamme (jusqu'à plus de 15 bars). Concernant le dispositif en PDMS, au delà de quelques centaines de millibars la perte de charge dévie d'une loi linéaire en raison de la déformation du canal. A débit imposé, la différence de pression diminue car la section du canal augmente (le canal se courbe vers l'extérieur). Ainsi, cette grande rigidité des stickers m'a permis

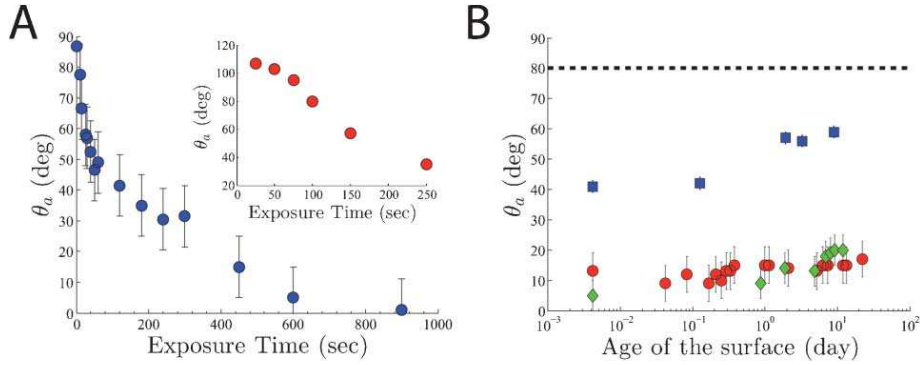


FIGURE 2.5: Courbes extraites de [5]. A. Angle de contact d'avancée d'une goutte d'eau sur un film de NOA 81 en fonction du temps d'exposition aux UV. Inset : mêmes mesures pour une goutte d'eau immergée dans de l'hexadécane. B. Effet du vieillissement sur les propriétés de mouillage de la résine NOA 81. Les points bleus (resp. rouges) correspondent à un film de NOA 81 exposé pendant 200 s (resp. 1800 s) et conservé à l'air. Les points verts correspondent à un film de NOA 81 exposé pendant 1800 s et conservé dans de l'hexadécane.

de produire des écoulements parfaitement réciproques, nécessaires à l'étude sur l'émergence de l'irréversibilité (expérience d'écho, voir chapitre 4).

De plus, cette rigidité implique des temps de réponses beaucoup plus faibles que pour les puces en PDMS. En effet, le temps de relaxation du matériau est alors beaucoup plus faible. Ceci est mis en évidence figure 2.4B, où Bartolo *et al* ont représenté le débit mesuré dans les mêmes dispositifs en fonction du temps en imposant une différence de pression de 3 bars brusquement coupée à $t = 0$. Les débits sont mesurés par PIV grâce à des traceurs fluorescents (diamètre $1\mu\text{m}$). Pour le dispositif en NOA 81, l'écoulement s'arrête complètement au bout de quelques dizaines de millisecondes, alors qu'il faut attendre plusieurs secondes pour la puce en PDMS. Cette propriété a été mise à profit pour la mise en place d'un système de gouttes à la demande permettant la création d'un nombre faible de gouttes (voir section 2.2.2).

Finalement, la résine NOA 81 est compatible avec beaucoup de solvants organiques, contrairement au PDMS. Ceci permet d'injecter des fluides de natures très différentes sans altération des puces et donne donc accès à des études plus riches que celles conduites en PDMS. En effet, le PDMS se gonfle dans de nombreux solvants organiques, ce qui a des effets irréversibles sur la forme du dispositif. C'est le cas notamment avec l'hexadécane, huile organique très utilisée en microfluidique. Cette altération des dispositifs en PDMS par les solvants organiques limite donc les temps d'expérimentation à quelques heures. On préférera alors travailler en solution aqueuse lors d'une utilisation d'un dispositif en PDMS.

Or le PDMS est naturellement hydrophobe et modifier ces propriétés de sur-

face sur le long terme n'est pas facile. Pour le rendre hydrophile, une exposition au plasma à oxygène suffit mais n'est pas durable. Il faut donc consécutivement à l'exposition remplir le dispositif d'eau afin de garder ce caractère hydrophile. Ceci empêche l'expérimentateur de fabriquer beaucoup de dispositifs en avance afin d'avoir une longue période de manipulation : travailler avec du PDMS nécessite une fabrication quasi-quotidienne. On comprend alors que le PDMS n'est pas adapté à la microfluidique digitale. Faire une émulsion d'huile dans de l'eau posera des problèmes de mouillage des gouttes sur les parois, alors qu'une émulsion d'eau dans de l'huile gonflera la puce et limitera nettement les temps de manipulations. La NOA 81 quant à elle est naturellement légèrement hydrophobe (angle de contact d'avancée $\theta_a \approx 90^\circ$), mais l'hydrophilie peut être ajustée continûment jusqu'à des angles de contact très faibles (angle de contact d'avancé $\theta_a \gtrsim 0^\circ$) grâce à une méthode mise en place par Levaché *et al* en 2012 [5], voir figure 2.5A. De plus cette modification est effective sur des temps importants, de l'ordre de plusieurs semaines, voir figure 2.5B [5]. J'ai donc utilisé cette technique pour rendre mes dispositifs hydrophiles afin de produire aisément des émulsions d'héxadécane dans de l'eau sans problème de mouillage. Les techniques de fabrication de gouttes que j'ai mises en place pendant cette thèse font d'ailleurs l'objet de la prochaine partie.

2.2 Faire des gouttes : de l'émulsion à la goutte unique

Durant ces 3 années de thèse, je me suis intéressé à la dynamique de particules dans 2 types de géométries confinées : (i) le comportement d'un grand nombre de particules soumis à un écoulement bidimensionnel, cet écoulement étant soit périodique (expérience d'écho, voir chapitre 4) soit simple (fluctuations de densité et propagation d'ondes, voir chapitre 3), (ii) l'évolution d'un nombre restreint de gouttes (en l'occurrence 3) s'écoulant dans un réseau unidimensionnel de boucles (voir chapitre 5). Les enjeux et les difficultés apportés par ces 2 études sont donc très différents. En effet, quelle que soit la géométrie utilisée pour créer les gouttes, produire une émulsion composée d'un grand nombre de gouttes monodisperses nécessite d'atteindre un régime stationnaire de fonctionnement du dispositif. Or les temps de transitoire sont relativement longs (quelques dizaines de secondes à quelques minutes). Ainsi, en raison de ce transitoire, produire un système physique de seulement 3 gouttes monodisperses est impossible avec une géométrie passive. Pour cela, il est nécessaire d'avoir un contrôle actif sur les écoulements des liquides.

Cette partie est donc séparée en 2 sections. J'explique tout d'abord comment j'ai réussi à mettre en place un système microfluidique passif permettant de créer une émulsion bidimensionnelle monodisperse ayant une fraction surfacique et des tailles de gouttes contrôlées. Ensuite, j'introduis la technique de Drop-on-Demand [4] basée sur la technologie de vannes microfluidiques pneumatiques [3] et permettant de créer un petit nombre de gouttes. Cette technologie est dite

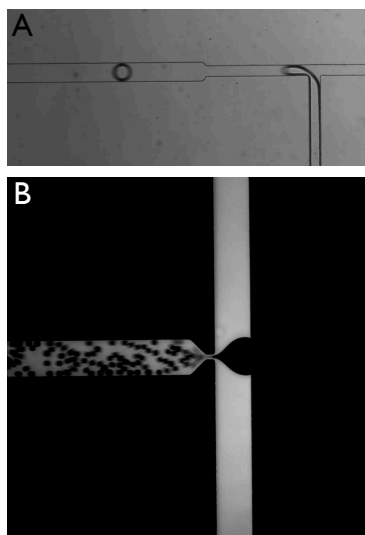


FIGURE 2.6: A. Photographie d'une jonction en T permettant la création de gouttes monodisperses (ici gouttes d'eau dans de l'hexadécane + Span 80). Les canaux au niveau de la jonction ont une largeur de $75\ \mu\text{m}$ - R. Jeanneret, 2010. B. Photographie en fluorescence d'un Flow-Focusing lors de la production de gouttes monodisperses (gouttes d'hexadécane dans de l'eau + SDS). Les canaux d'arrivée de fluides ont une largeur de $200\ \mu\text{m}$ - R. Jeanneret, 2012.

active car les écoulements de liquides sont contrôlés dans le temps, ce qui permet également de découpler taille des particules et fréquence d'émission.

2.2.1 Production d'une émulsion monodisperse

Pour produire de grandes quantités de gouttes monodisperses de tailles micrométriques, 2 géométries sont couramment utilisées : la "jonction en T" [6] et le Flow-Focusing (FF) [7]. Un exemple de chacune de ces géométries, tiré de mes expériences, est représenté figure 2.6. Le principe de ces systèmes est le cisaillement de la phase dispersée (les gouttes) par la phase continue au niveau d'une jonction.

Dans ces 2 géométries la taille des gouttes et la fréquence d'émission sont fixées d'une manière complexe par de nombreux paramètres géométriques et physiques : w/h , w/l , h/l , η_w/η_o , Q_w/Q_o , γ ,... où w , h et l sont les dimensions des canaux dans les 3 dimensions, η_w et η_o les viscosités des fluides utilisés, Q_w et Q_o les débits imposés et γ la tension interfaciale des 2 fluides. Plusieurs papiers théoriques et expérimentaux apportent des réponses partielles sur les principes de fonctionnement de ces générateurs de gouttes, mais la compréhension totale des processus mis en jeu n'est pas encore complète [8, 9, 10, 11]. En tout état

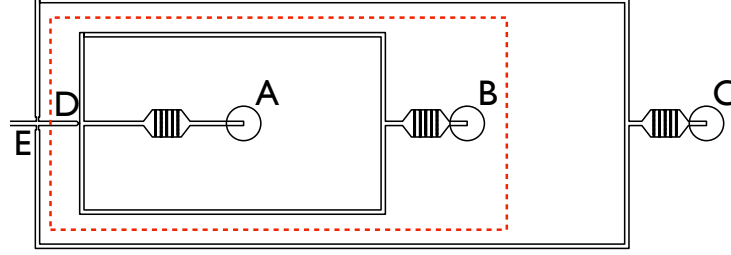


FIGURE 2.7: Schéma à l'échelle du générateur de gouttes utilisé pour mes expériences d'écho (voir chapitre 4). Largeur des canaux : $w = 200 \mu\text{m}$. Le rectangle en ligne discontinue rouge constitue le Flow-Focusing. Les canaux extérieurs constituent le dilueur. La phase dispersée est injectée par l'entrée A, tandis que la phase continue est injectée par les entrées B et C. Les gouttes sont produites au niveau de la constriction D (voir figure 2.6 pour un zoom sur cette constriction) et la dilution s'effectue au niveau de la jonction E.

de cause, pour un système physique donné, à savoir la donnée des 2 liquides et la géométrie utilisée, le volume des gouttes obtenues et la fréquence à laquelle elles sont émises ne vont dépendre que des débits ou pressions imposé(e)s. Mais ces 2 quantités sont intimement liées : on ne peut varier indépendamment sur une large gamme la taille des gouttes et leur fréquence d'émission.

Or un des challenges de mes expériences bidimensionnelles était de réussir à créer des émulsions ayant un grand nombre de gouttes monodisperses et dont la fraction surfacique pouvait être facilement modifiée sans influencer sur le volume des particules. Le choix a été fait de travailler avec un générateur de gouttes de type FF auquel a été ajouté un dilueur, voir figure 2.7. Le rectangle en traits pointillés rouges constitue le FF à proprement parler. La phase dispersée est injectée au niveau de l'entrée A, la phase continue au niveau de l'entrée B. Les gouttes sont alors créées à la constriction notée par la lettre D (la figure 2.6B est une photographie de cette constriction). Les canaux extérieurs au rectangle rouge forment le dilueur. En injectant la phase continue également par l'entrée C, on introduit du volume de liquide supplémentaire entre les gouttes au niveau de la jonction E ce qui permet de les diluer. Les 3 hexagones présents juste après les entrées A, B et C sont des filtres qui permettent de bloquer toute impureté pouvant venir des tuyaux d'injection. Ils sont constitués d'un réseau de plots rectangulaires dont la séparation est inférieure à la taille de la constriction D. Ceci assure qu'aucune poussière ne vienne boucher la buse D, ce qui rendrait le générateur de gouttes inutilisable. Après de nombreux dispositifs jetés pour cette raison, ces filtres sont devenus indispensables. Les dimensions de ce FF sont les suivantes : hauteur $h = 11 \mu\text{m}$, largeur des canaux $w = 200 \mu\text{m}$, largeur de la constriction $l = 30 \mu\text{m}$.

Cette géométrie permet de créer des émulsions monodisperses de diamètre de l'ordre de $30 \mu\text{m}$ parfaitement reproductibles. Les particules créées sont des

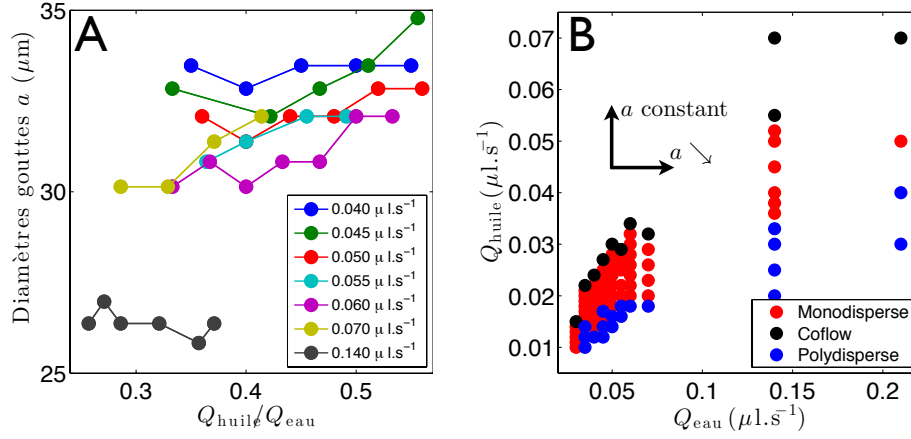


FIGURE 2.8: A. Diamètre des gouttes obtenues grâce au Flow-Focusing en fonction du rapport des débits d'huile (phase dispersée) et d'eau (phase continue) pour différents débits d'eau appliqués. B. Diagramme de fonctionnement du générateur de gouttes dans le plan $(Q_{\text{huile}}, Q_{\text{eau}})$. Les points rouges (resp. bleus) correspondent à un régime de production de gouttes monodisperses (resp. polydisperses). Les points noirs correspondent à un régime de coflow, où il n'y a plus production de gouttes.

gouttes d'hexadécane dans de l'eau. Un surfactant, du SDS (Sodium Dodecyl Sulfate, concentration massique $c_w = 0.1\%$) est rajouté à l'eau afin de stabiliser les gouttes et éviter leur coalescence. La figure 2.8A présente le diamètre des gouttes obtenues lorsque l'on impose un débit d'eau constant (phase continue) et que l'on varie le débit en huile (phase dispersée) sans imposer de dilution. Sur cette figure les couleurs codent la valeur du débit en eau. On peut remarquer tout de suite qu'à débit d'eau fixé le diamètre des gouttes obtenues est quasiment constant en fonction du débit d'huile. Ce régime de fonctionnement du FF est appelé dripping. De plus, la taille des gouttes a diminue lorsque l'on augmente le débit de la phase continue. Pour des débits en huile inférieurs à ceux présentés sur la figure l'émulsion obtenue est polydisperse, alors que pour des débits supérieurs la création de gouttes ne s'effectue plus et un coflow est obtenu. Ceci est résumé sur le diagramme du FF dans le plan $(Q_{\text{eau}}, Q_{\text{huile}})$ où sont représentés les 3 régimes de fonctionnement du générateur de gouttes, figure 2.8B. Le domaine de fonctionnement monodisperse est contenu dans une région compacte de ce plan $(Q_{\text{eau}}, Q_{\text{huile}})$. Il est à noter que cette caractérisation a été conduite en imposant le débit d'eau voulu et un faible débit d'huile puis en augmentant progressivement Q_{huile} . Le diagramme obtenu en diminuant le débit d'huile aurait été relativement différent en raison d'un fort hystérésis sur l'apparition du régime monodisperse.

Le régime de dripping est très pratique pour créer une émulsion avec une

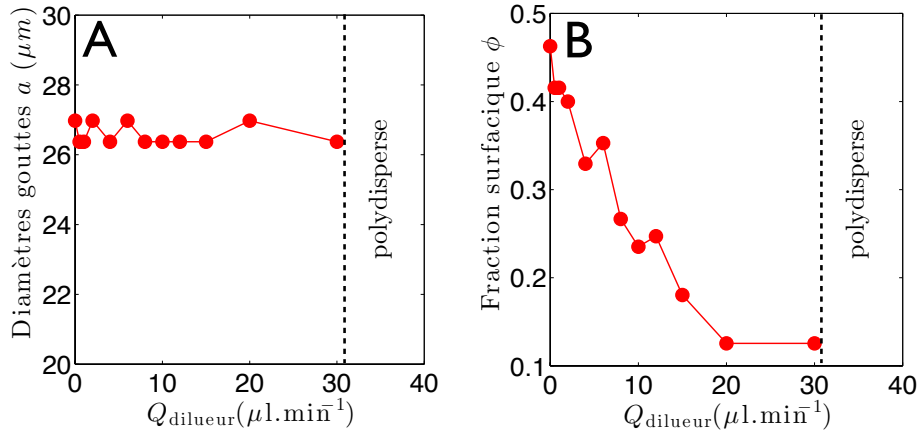


FIGURE 2.9: A. Influence du dilueur sur le diamètre des gouttes obtenues. La dilution ne perturbe pas la production des gouttes jusqu'à un débit de $30 \mu\text{l} \cdot \text{min}^{-1}$, au delà les particules deviennent polydisperses. B. Fraction surfacique obtenue grâce à la dilution. La concentration peut être variée de $\sim 50\%$ à $\sim 10\%$.

taille de gouttes très contrôlée. En effet, en fixant le débit de la phase continue je choisis la taille de gouttes de l'émulsion. Pour avoir une très bonne reproductibilité, j'impose le débit de la phase dispersée au centre de la zone rouge afin de m'affranchir des éventuelles incertitudes expérimentales sur ce débit.

La fraction surfacique en gouttes peut être modifiée grâce au dilueur placé en sortie du FF. Il faut s'assurer tout de même que l'injection de liquide par ce dilueur ne perturbe pas la production de gouttes en amont. Pour cela je crée des gouttes en fixant le débit d'eau $Q_{\text{eau}} = 0.140 \mu\text{l} \cdot \text{s}^{-1}$ et le débit d'huile $Q_{\text{huile}} = 0.040 \mu\text{l} \cdot \text{s}^{-1}$. J'augmente ensuite progressivement le débit en eau dans le dilueur et mesure le diamètre des gouttes. Le résultat est représenté figure 2.9A. La taille des gouttes obtenues reste constante jusqu'à $30 \mu\text{l} \cdot \text{min}^{-1}$. Au delà, le débit est trop important et perturbe la production de gouttes conduisant à la création d'une émulsion polydispense. Nous pouvons également par cette expérience mesurer les fractions surfaciques ϕ accessibles. La dilution permet de faire varier cette fraction de $\sim 50\%$ à $\sim 10\%$ sans modifier la taille des gouttes ni induire de polydispersité, voir figure 2.9B.

La géométrie FF présentée ici ainsi que la "jonction en T" permettent la création d'un courant continu de gouttes monodisperses. Ce sont sûrement les plus utilisées en microfluidique mais d'autres types de générateur de gouttes ont été mis en place permettant par exemple la production à haute fréquence ($\sim \text{kHz}$) d'émulsions micrométriques monodisperses. On peut citer notamment Yobas *et al* [12] qui ont réussi à créer des gouttes monodisperses de $20 \mu\text{m}$ à $30 \mu\text{m}$ à des fréquences comprises entre 2000 et 12000 Hz en utilisant une géométrie proche du Flow-Focusing ou encore Nisisako et Torii qui en 2007 ont atteint

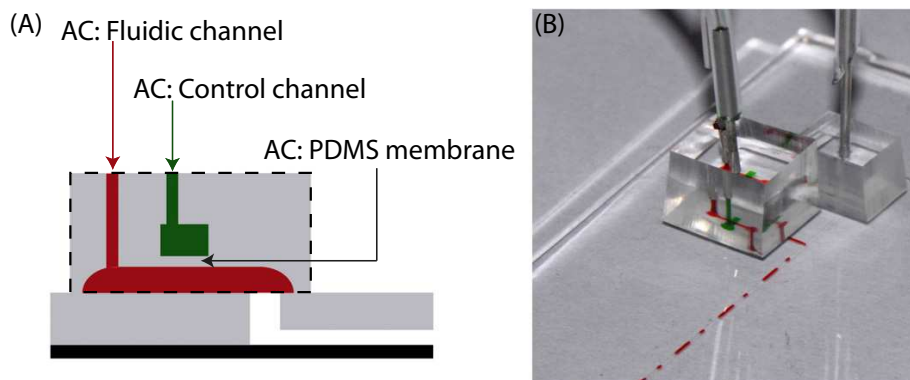


FIGURE 2.10: A. Schéma d'une coupe d'une vanne microfluidique. B. Photographie d'une vanne collée sur un sticker microfluidique permettant la production de gouttes à la demande. Figure extraite de [4].

des fréquences de l'ordre de la centaine de kHz en parallélisant les générateurs de gouttes [13]. Pour une revue de différents outils permettant la production de courants continus de gouttes et de certaines applications de la microfluidique digitale, je conseille la lecture de [14]. Ces outils sont satisfaisants pour de nombreuses études en microfluidique digitale, mais présentent 2 principaux inconvénients potentiellement problématiques pour d'autres expériences. En effet, pour chacun de ces générateurs il existe un couplage plus ou moins complexe entre la taille des gouttes, la distance inter-particule (ou la fréquence d'émission) et la vitesse de la phase continue. Ceci implique que l'on ne peut pas faire varier indépendamment sur de larges gammes la fréquence d'émission et le volume des gouttes par exemple. Ainsi pour des études de trafic de particules dans des réseaux on veut pouvoir modifier la fréquence d'émission (à savoir le courant en particules) en gardant la taille des gouttes constante afin de ne varier qu'un seul paramètre [15]. De plus, ces outils génèrent des courants continus de gouttes obtenus après un transitoire relativement long ne permettant pas de travailler avec un petit nombre de particules. Notre étude sur la dynamique d'un nombre fini de particules dans un réseau de boucles microfluidiques (voir chapitre 5) a donc nécessité la mise en place d'une autre méthode afin de créer et manipuler seulement 3 gouttes de même taille. Cette technique dite de Drop-on-Demand a été mise en place par Galas *et al* en 2009 [4] et est basée sur la technologie des vannes pneumatiques [3].

2.2.2 Production d'une goutte unique

Les techniques présentées dans la section précédente sont dites passives car aucun contrôle temporel n'est effectué sur les débits ou pressions imposé(e)s. Ici je présente une méthode active permettant de contrôler la pression imposée à

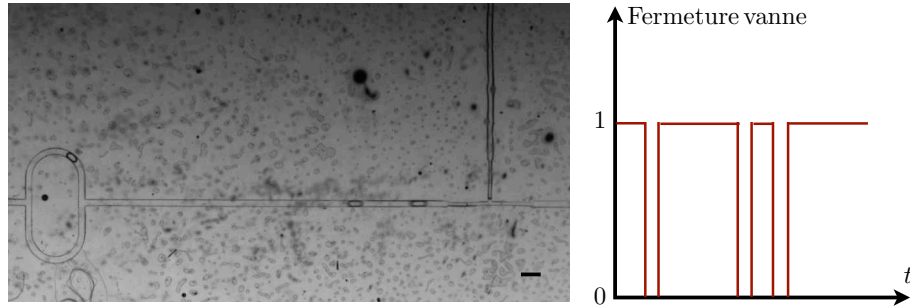


FIGURE 2.11: Illustration de la versatilité du système de gouttes à la demande. 3 gouttes de même taille sont créées à la jonction en T en appliquant une séquence d'ouverture et de fermeture à la vanne pneumatique. Les distances inter-particule peuvent être modifiées sans changement de la taille des gouttes. Barre d'échelle : $300\mu\text{m}$ - R. Jeanneret, 2010.

la phase dispersée afin de découpler fréquence d'émission et volume des gouttes créées et de s'affranchir d'un éventuel régime transitoire.

Le principe est de placer sur le trajet de la phase dispersée en amont du générateur de gouttes (une jonction en T pour mes expériences) une vanne microfluidique permettant d'ouvrir et de fermer le canal par lequel s'écoule ce liquide. Un schéma et une photographie de ces vannes, extraits de [4], sont représentés figure 2.10. Ces vannes sont constituées de 2 couches de PDMS. Une première couche très fine contient le canal fluidique (en rouge) tandis que l'autre couche contient le canal de contrôle (en vert). Ce canal de contrôle est en fait une ouverture droite sans sortie. L'application d'une pression dans cette impasse va donc déformer le canal de contrôle et appuyer sur la membrane de PDMS séparant les 2 canaux ce qui implique la fermeture du canal fluidique. Pour une fermeture optimale, les différentes tailles des canaux et de la membrane doivent être correctement ajustées et le canal fluidique doit avoir une section semi-elliptique. Une section rectangulaire pour ce canal induirait la formation de gouttières sur les bords synonyme de fuites de liquide, incompatibles avec l'objectif de création contrôlée de gouttes. La technique de fabrication de ces vannes est décrite en annexe 2.5.1.

Ainsi la présence de cette vanne sur le trajet de la phase dispersée permet de couper et de rétablir son débit induisant un contrôle total sur les gouttes formées au niveau de la jonction en T. Le temps d'ouverture de la vanne fixe la taille des gouttes obtenues et le temps de fermeture détermine la fréquence de production en fonction du débit imposé à la phase continue. Il est alors possible de produire un train de gouttes monodisperses de taille finie avec des distances inter-particules indépendantes les unes des autres. Ceci est illustré par la figure 2.11, où une séquence d'ouverture et fermeture de la vanne microfluidique donne lieu à un train de 3 gouttes non périodique. Ce système expérimental est donc

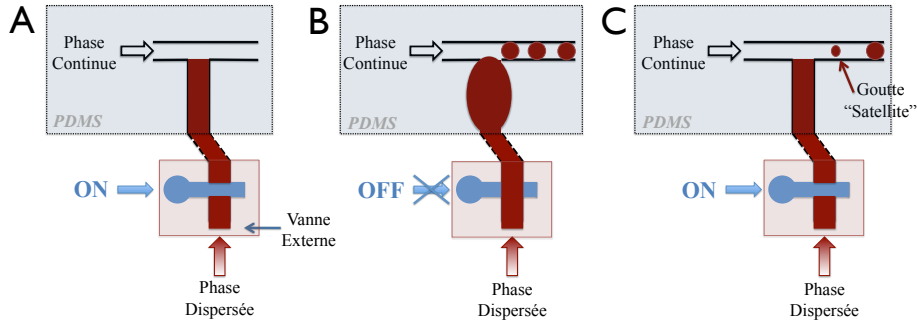


FIGURE 2.12: Formation de gouttes satellites due à l'élasticité du PDMS. A. Le système est au repos et à l'arrêt. Vanne fermée. B. Séquence d'ouverture/fermeture de la vanne. Les gouttes sont fabriquées à la jonction en T. Le canal en T s'élargit du fait de la différence de pression imposée rapidement. C. Vanne fermée. Le canal en T retrouve sa forme initiale, ce qui induit la formation d'une goutte satellite. Figure extraite de [15].

idéal pour notre étude sur le trafic de particules (voir chapitre 5) où notre but est d'injecter dans un réseau unidimensionnel de boucles seulement 3 gouttes de même taille avec des distances inter-particules contrôlables.

Concernant la fabrication, ces vannes microfluidiques sont externalisées et collées sur une entrée du dispositif principal d'étude. Ceci a plusieurs avantages :

- Le design des circuits microfluidiques peut se faire sans se soucier de l'intégration d'une vanne.
- Les vannes étant faites en PDMS cela permet de travailler avec des dispositifs rigides de type stickers microfluidiques. Il est d'ailleurs indispensable de travailler avec des dispositifs rigides pour avoir des générateurs de gouttes à la demande efficaces. En effet, si les temps de relaxation du matériau sont importants, on peut induire la formation d'une goutte satellite lors de la fermeture de la vanne, voir figure 2.12. Lors de la première ouverture de la vanne microfluidique permettant la création de gouttes, la surpression dans la jonction en T passe de 0 à quelques centaines de millibars en quelques millisecondes. Si cette jonction en T est faite en PDMS par exemple, les bords vont se déformer conséquemment afin d'absorber élastiquement l'énergie imposée au système. Ce canal va garder cette forme déformée lors de toute la séquence d'ouverture/fermeture de la vanne permettant la création de gouttes, car il n'aura pas le temps de relaxer entre 2 ouvertures. Lorsque la vanne est fermée à la fin de la production de la séquence de gouttes, le canal relaxe ce qui induit un flux de liquide dans la jonction en T créant une goutte satellite dans le système. Ce potentiel problème était à éviter absolument pour notre étude de la dynamique de 3 gouttes dans un réseau unidimensionnel de boucles.
- La fabrication des vannes se fait de manière totalement indépendante des autres outils, idéal pour une production massive et exceptionnelle. Cette fabri-

cation des vannes étant en effet relativement longue, ce dernier point engendre un gain de temps non-négligeable.

Ce système de gouttes à la demande possède tout de même une limitation concernant la fréquence d'émission des gouttes. La pression imposée au canal de contrôle est généralement de 1 bar. Cela suffit pour bien fermer la vanne aux pressions utilisées pour injecter les fluides (autour de 500 millibars). Ce canal de contrôle est rempli d'eau plutôt que d'air afin d'obtenir des meilleurs temps de réponse. L'ouverture et fermeture de la vanne PDMS se fait grâce à une vanne solénoïde (Lee valve LHDA1211115), qui a des temps de réponse de l'ordre de la milliseconde. Le point limitant de ces vannes microfluidiques réside en fait dans leur conception. Le principe est de déformer un matériau mou, le PDMS, afin d'obstruer un canal fluidique. Les temps de relaxation de ce matériau mou sont donc relativement importants. Le temps de réponse de fermeture ou d'ouverture de la vanne est en effet de l'ordre de ~ 50 ms. La fréquence maximale de production de gouttes est donc d'environ 10Hz. Cette limitation n'a pas eu d'influence sur nos travaux concernant le trafic de particules. En effet, dans cette étude et dans les régimes sondés, la dynamique ne dépend pas de la vitesse moyenne des gouttes (voir chapitre 5). Ainsi la formation des gouttes peut se faire relativement lentement en imposant un débit à la phase continue assez faible et des temps d'ouverture et fermeture de la vanne supérieurs à 50ms.

J'ai donc présenté dans ces 2 dernières sections différentes techniques microfluidiques nécessaires à la mise en place de mes expériences de façon générale. La section suivante est focalisée quant à elle sur les spécificités de l'expérience d'écho et leurs conséquences sur la manière dont le système expérimental a été finalisé.

2.3 Prototypage d'une expérience d'écho

Pour mener à bien cette expérience d'écho, la réflexion sur l'élaboration du système expérimental comprend 3 points principaux : (i) créer une émulsion contrôlée, (ii) réussir à injecter cette émulsion dans une chambre de visualisation en obtenant une densité homogène, (iii) contrôler de manière très précise l'écoulement induit à cette émulsion. Cette réflexion m'a donc amené à prototyper l'expérience en séparant les différents éléments à optimiser : production de gouttes, chambre de visualisation, contrôle des écoulements. Je m'intéresse dans cette section à ces 2 derniers éléments de l'expérience d'écho, l'aspect production de gouttes ayant déjà été abordé.

2.3.1 Optimisation de la chambre de visualisation

L'émulsion à obtenir dans la chambre de visualisation doit être une émulsion de gouttes sphériques. D'après [16], des gouttes contraintes à prendre une forme non-sphérique en raison du confinement peuvent être piégées dans des trous. Ceux-ci représentent effectivement un puits d'énergie de surface pour les

gouttes. Celles-ci restent alors piégées par déformation de leurs surfaces à l'intérieur des cavités. Pour les mêmes raisons, des gouttes aplaties assujetties à se déplacer dans un canal dans lequel une glissière a été ajoutée vont suivre cette glissière [16]. Ainsi produire des gouttes non-sphériques en vue d'effectuer une expérience d'écho n'est pas envisageable : certaines gouttes pourraient se piéger dans des imperfections du canal, d'autres auraient des mouvements imposés par ces mêmes imperfections. Ces effets sont à éviter à tout prix car ils induisent par nature une dynamique irréversible.

De plus, ces gouttes sphériques doivent avoir un diamètre comparable à la hauteur du canal d'étude afin d'obtenir des interactions hydrodynamiques les plus importantes possibles. Optimiser le diamètre des gouttes par rapport à la hauteur du canal fournit un autre avantage : le système obtenu peut vraiment être considéré comme quasi-2D car aucun déplacement dans la troisième dimension spatiale n'est possible.

Comme je l'ai déjà précisé dans la partie 2.2.1, le fonctionnement d'un Flow-Focusing dépend de nombreux paramètres géométriques et physiques. La compréhension générale de cette géométrie n'est pour l'instant pas complète. Ainsi la démarche suivie afin de réussir à créer une émulsion de gouttes sphériques dans un canal bidimensionnel a été la suivante. J'ai choisi une géométrie de Flow-Focusing que j'ai caractérisée complètement avec les liquides utilisés pour mes expériences. Ceci a permis l'obtention du diagramme de fonctionnement de ce générateur de gouttes et de connaître les tailles de gouttes accessibles, voir figure 2.8. Une fois ces données connues, la géométrie du canal de visualisation a été choisie afin de réussir à obtenir une émulsion de gouttes sphériques de manière reproductible.

Le prototypage de la géométrie du dispositif final a été fait en utilisant des stickers microfluidiques, facilement modulables et rapides à fabriquer. Après avoir obtenu un FF fonctionnant selon mes besoins et un canal de visualisation compatible avec ce FF, le design était optimisé. Des dispositifs en verre ont alors été achetés auprès d'une entreprise spécialisée dans la microfabrication (Micronit Microfluidics, the Netherlands). Ces dispositifs, obtenus par gravure chimique du verre, sont couteux mais de nettement meilleur qualité que les stickers microfluidiques. En effet, la rugosité de ces dispositifs est de seulement $\sim 100\text{nm}$ sur des distances de l'ordre de plusieurs centimètres contre $\sim 1\mu\text{m}$ pour les stickers microfluidiques. De plus, ils peuvent être nettoyés facilement à la soude et être utilisés durablement, ce qui n'est pas le cas des stickers.

Le schéma du dispositif final utilisé est représenté figure 2.13. La partie noire du schéma correspond à des canaux de $11\mu\text{m}$ de hauteur et la partie bleue à des canaux de $27\mu\text{m}$. Deux grandes chambres identiques sont intégrées dans ce dispositif. La chambre (1) est utilisée pour étudier la dynamique des particules. La seconde sert à évacuer les gouttes pendant l'établissement du régime stationnaire du Flow-Focusing. Il est effectivement primordial d'avoir une émulsion hautement monodisperse dans la chambre de visualisation. Or pendant le régime transitoire du FF, de très grosses gouttes sont produites qui restent éventuellement bloquées dans le canal de visualisation [16]. Ainsi lors du transitoire, le canal "poubelle" (2) est ouvert pour évacuer ces gouttes non-souhaitées,

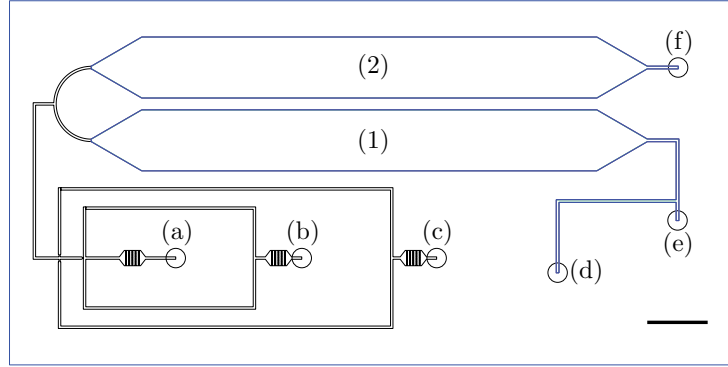


FIGURE 2.13: Schéma du dispositif final en verre. Un module sert à générer les gouttes et à les diluer (en noir, $h = 11 \mu\text{m}$). La grande chambre (1) sert à étudier la dynamique des gouttes, le canal (2) sert à évacuer les gouttes non souhaitées et formées pendant le transitoire du Flow-Focusing. Les parties bleues correspondent à des canaux de hauteur $h = 27 \mu\text{m}$. Barre d'échelle : 5 mm

l'autre reste fermé. Une fois que le régime stationnaire est établi, j'envoie l'émulsion dans le canal (1) en fermant/ouvrant des vannes extérieures ayant de très faibles volumes morts. Cette procédure permet d'obtenir une émulsion parfaitement monodisperse dans la grande chambre de visualisation (1).

Les liquides sont injectés par les entrées (a), (b) et (c) pour produire les gouttes. Les jonctions (d) et (f) sont des sorties permettant d'évacuer les gouttes. L'écoulement induit pour l'étude de la dynamique des gouttes dans la chambre (1) se fait quant à lui par une seringue placée sur l'entrée (e). Le mouvement du piston de cette seringue est contrôlé par un pousse-seringue de haute précision (Cetoni Nemesys). Mais réussir à obtenir un écoulement périodique représente une grande partie de la mise en place de l'expérience. Je présente donc dans la section suivante, différentes étapes par lesquelles je suis passé avant de contrôler parfaitement les écoulements appliqués à l'émulsion.

2.3.2 Contrôle des écoulements

Mon approche pour créer un écoulement périodique a beaucoup évolué pendant la phase de prototypage de l'expérience. Les premières idées mises en place étaient basées sur un contrôle en pression. Je présente donc d'abord 2 de ces principales idées qui n'ont pas été fructueuses. Je suis ensuite passé à un contrôle en débit avec un pousse-seringue de précision (Cetoni Nemesys) et qui fait l'objet de la seconde partie. Mais là encore de nombreuses subtilités apparaissent lorsque l'objectif est de créer un écoulement de débit moyen nul. Cette phase du prototypage a donc été longue et difficile.

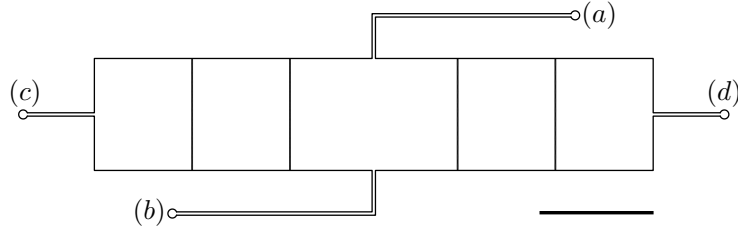


FIGURE 2.14: Schéma du premier dispositif utilisé pour optimiser le contrôle des écoulements. Barre d'échelle : 1mm.

Contrôle en pression

Les premiers tests de création d'un écoulement périodique ont été faits dans le dispositif présenté figure 2.14. Une vanne microfluidique en PDMS contenant une jonction en T est collée sur l'entrée (a) afin de créer des gouttes. La sortie (b) sert à évacuer les gouttes à la fin des expériences, elle reste fermée pendant la durée des manipulations. Les lignes perpendiculaires au canal principal sont en fait des petits piliers maintenant le parallélisme des murs supérieur et inférieur. Les entrées (c) et (d) servent à appliquer un écoulement périodique à l'émulsion. L'idée est d'appliquer une pression constante P_c à l'entrée (c) et d'appliquer une pression oscillante $P_d = P_c + \Delta P \sin(2\pi t/T)$ à l'entrée (d). Les pressions appliquées à ces entrées sont contrôlées grâce à des boîtes de pression, conçues au laboratoire, utilisant des régulateurs de pression (Parker, VSO-EP-Miniature Pressure Controller) commandés numériquement. La pression est appliquée à des réservoirs de liquide connectés au dispositif. Or ces réservoirs ne sont pas complètement hermétiques : l'air comprimé injecté dans ces réservoirs fuit légèrement. Ainsi la pression effective dans les réservoirs n'est pas la pression voulue et $\langle P_d \rangle_T \neq P_c$. Ceci donne lieu irrémédiablement à une dérive des gouttes dans le canal, car le débit moyen n'est pas nul. Le contrôle en pression simple n'est donc pas une solution pour maîtriser aussi précisément des écoulements.

L'idée suivante que j'ai mise en place est toujours basée sur un contrôle en pression mais de manière à s'affranchir de ces fuites de gaz. Cette méthode nécessite un changement dans le design du dispositif. La nouvelle puce est représentée figure 2.15. Cette fois les gouttes sont créées in-situ au niveau de la jonction en T (a). De la même manière, la sortie (b) sert à évacuer les gouttes à la fin des expériences, elle reste fermée pendant la durée des manipulations. L'application des pressions se fait cette fois via 4 entrées (c), (d), (e) et (f). Une vanne microfluidique est collée sur chacune de ces entrées. Les entrées (c) et (d) sont reliées au même réservoir de liquide, ainsi que les entrées (e) et (f). La pression P_1 est appliquée au réservoir branché aux entrées (c) et (d). Le second réservoir est soumis à la pression $P_2 > P_1$. Les vannes (c) et (f) sont fermées pendant un temps $T/2$, les 2 autres restant ouvertes. Les liquides s'écoulent alors de la gauche vers la droite avec une différence de pression $\Delta P = P_2 - P_1$.

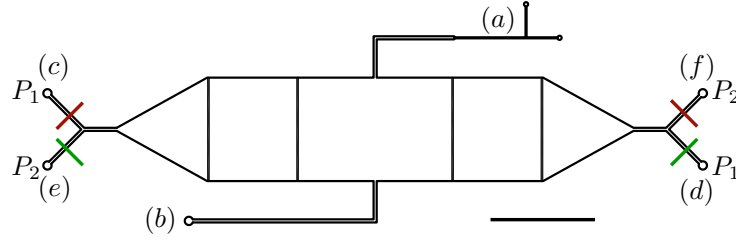


FIGURE 2.15: Schéma du second dispositif utilisé pour optimiser le contrôle des écoulements. Barre d'échelle : 1mm.

Les vannes (c) et (d) sont alors ouvertes et les 2 autres fermées pendant le même temps $T/2$: l'écoulement s'inverse car la différence de pression est maintenant $\Delta P = -(P_2 - P_1)$. L'écoulement produit est donc censé être périodique, car les fuites dans les réservoirs n'ont plus aucun effet. Mais cette méthode n'est pas plus efficace que la précédente en raison des vannes microfluidiques. Tout d'abord le temps de réponse peut varier légèrement d'une vanne à l'autre ce qui peut induire une dérive. De plus, la fermeture des vannes n'assure pas forcément la fermeture complète des canaux : des fuites de liquide peuvent exister conduisant de la même façon à une dérive des gouttes.

J'ai décidé après ces tentatives infructueuses de passer à un contrôle en débit en utilisant un pousse-seringue de précision.

Contrôle en débit

L'expérience d'écho nécessite de déplacer des volumes de liquide très faibles. Par exemple, avancer les gouttes sur une distance égale à 10 fois leur diamètre nécessite de déplacer un volume $V = 10d \times L \times h \sim 50 \text{ nl}$ de liquide ($d \sim 30 \mu\text{m}$: diamètre des gouttes, $L = 5 \text{ mm}$: largeur du canal, $h \sim 30 \mu\text{m}$: hauteur du canal). Pour un débit sinusoïdal $Q(t) = Q_0 \sin(2\pi t/T)$ de période typique $T = 10 \text{ s}$, cela correspond à une amplitude très petite $Q_0 = 10 \text{ nl.s}^{-1}$. L'erreur sur ces débits imposés doit donc être très faible pour considérer l'écoulement comme périodique. Ceci n'est pas du tout évident même avec des outils de haute précision tel que ceux utilisés. Plusieurs problèmes surviennent lorsque l'on essaye naïvement de brancher une seringue sur le pousse-seringue afin d'effectuer un écoulement périodique. Le choix de la seringue est en fait primordial.

Tout d'abord, la vis sans fin du pousse-seringue déplaçant le piston de la seringue a une vitesse minimum d'avancée. Les débits accessibles ont alors un minimum donné par le diamètre intérieur de la seringue. Afin d'appliquer des débits $< 100 \text{ nl.s}^{-1}$, les seringues utilisables se limitent à des volumes $< 100 \mu\text{l}$, correspondant à des diamètres intérieurs $< 1 \text{ mm}$. Or la longueur des pistons de ces seringues est de l'ordre de 5 cm. La tige des pistons flambe donc facilement lorsque le pousse-seringue appuie dessus. Ce flambage implique nécessairement un écoulement non-périodique dans la chambre où se trouve les gouttes. Il est

alors nécessaire d'utiliser la seringue en ayant placé le piston quasiment en bout de course afin que la tige soit contraint à un mouvement rectiligne par le confinement à l'intérieur de la seringue.

De plus, de nombreuses seringues ont des pistons frottant beaucoup sur leur surface intérieure impliquant un mouvement de stick-slip. Ces seringues sont à bannir pour mon expérience car elles induisent un bruit très important dans le mouvement des gouttes. Après plusieurs essais, j'ai choisi de n'utiliser que des seringues de 25 et 50 μl de la gamme Hamilton 1700 series.

Finalement, le dernier point critique est la fixation de la seringue sur le pousse-seringue. En effet, après une longue période où j'observais des dérives dans le déplacement des gouttes sans en comprendre l'origine, je me suis aperçu que la seringue avait tendance à suivre le mouvement du piston. Ce problème a été identifié en filmant le déplacement du piston dans la seringue dont le mouvement pouvait aussi être suivi grâce aux graduations. N'étant pas suffisamment bien attaché au pousse-seringue, la seringue se déplaçait par rapport à celui-ci, entraînée par frottement du piston. Ce problème a été réglé en rajoutant du scotch double-face sur la seringue afin d'améliorer la fixation sur le pousse-seringue.

Les problèmes évoqués ci-dessus sont tous simples à gérer une fois qu'ils ont été identifiés. En revanche, leur identification a été loin d'être évidente et obtenir des écoulements réversibles représente une longue partie de la mise en place de l'expérience d'écho.

Le dernier point à décrire sur la construction des expériences concerne la gestion de données. En effet, les expériences montées fournissent des quantités de données très importantes dont la gestion n'est pas triviale et représente une réelle réflexion.

2.4 Acquisition, gestion et analyse des données

L'expérience d'écho demande de pouvoir suivre les trajectoires de plusieurs milliers de particules (~ 3000) sur des temps longs ($\sim 2\text{h}$). Un calcul rapide donne un ordre d'idée sur les quantités de données obtenues lors d'une seule expérience d'écho. Afin d'avoir une résolution spatiale suffisante sur la détection des particules, les expériences sont filmées avec une caméra CCD de 4 Mega-Pixels en codage 8 bits (Basler Aviator av2300-25gm). Une expérience dure typiquement 7000 s et le framerate de la caméra est fixé à 24 fps afin de pouvoir tracker facilement les particules. Ainsi je produis en terme d'acquisition d'images $4 \times 7000 \times 24 \text{ Mo} \sim 700 \text{ Go}$ par expérience ! De plus, après analyse brute de ces images afin d'obtenir les positions des particules à chaque pas de temps le tableau de données des positions obtenu contient $3000 \times 24 \times 7000 \times 3 \sim 1\,500\,000\,000$ nombres (le facteur 3 dans ce calcul correspond aux positions x et y et au temps t). Ceci équivaut à des fichiers de données de l'ordre de 20 à 30 Go par expérience ! Ces 2 calculs montrent donc que la gestion des données est un aspect crucial de ces recherches.

Or gérer des fichiers de données de plusieurs dizaines de Go n'est pas une

mince affaire. En effet, comme les ordinateurs commerciaux actuels possèdent de l'ordre de 1 – 10 Go de mémoire vive (comparable à la taille des fichiers à traiter), les temps de calcul peuvent vite devenir exorbitants si l'on ne gère pas les données de manière intelligente. Je présente donc dans cette partie 2 aspects très importants du traitement de données concernant mon expérience d'écho : la détection des particules à partir des films effectués puis le tracking des trajectoires à partir des fichiers obtenus après détection.

2.4.1 Détection des particules

Après acquisition des films des expériences la première étape à effectuer pour accéder aux trajectoires des particules est la détection de leurs positions à chaque pas de temps (i.e. sur chaque image). A partir des images brutes obtenues par l'expérience, différentes étapes de traitement sont nécessaires pour obtenir les positions des gouttes. En effet, l'algorithme utilisé pour détecter les positions a besoin d'images binarisées où les particules apparaissent en noir sur fond blanc. A partir de ces images, l'algorithme reconnaît les formes compactes et calcul leurs centres de masses. Ces formes compactes noires doivent être bien séparées spatialement afin que l'algorithme ne se trompe pas sur les centres de masses et qu'il "n'oublie" pas de particules. Ainsi, afin d'avoir des belles images binarisées, les images brutes sont traitées selon les 4 étapes suivantes, illustrées par la figure 2.16.

1. Division de l'image brute par une image du background (i.e. sans les gouttes) prise au préalable de l'expérience. Cette étape permet de s'affranchir des inhomogénéités d'intensité de l'éclairage.
2. Seuillage de l'image obtenue afin de la binariser. Cette étape est cruciale. Afin d'obtenir un seuillage efficace les images de départ doivent être déjà fortement contrastées.
3. Après seuillage, des trous peuvent apparaître dans les particules en raison d'inhomogénéités d'intensité encore présentes après division par le background. Une étape est donc nécessaire pour remplir ces trous en noir.
4. Application d'un filtre sur l'aire et la forme géométrique des objets noirs obtenus afin d'éliminer ceux ne pouvant correspondre à des particules.

L'acquisition des films se fait grâce à un VI Labview conçu par Bertrand Levaché et moi-même. Pour des raisons d'optimisation de vitesse d'acquisition, ce VI produit en sortie une séquence empilée d'images dans un fichier .bin. De même, le traitement d'image initial évoqué ci-dessus est fait grâce à un VI Labview. J'effectue ce traitement sans extraire les images du fichier original afin de gagner du temps. En effet, une procédure de traitement nécessitant l'extraction des images du fichier .bin demanderait 3 à 4 fois plus de temps. Typiquement j'obtiens les positions de toutes les particules sur 50000 images en 2h, alors que 7-8h seraient nécessaires si l'on devait extraire en premier lieu les images.

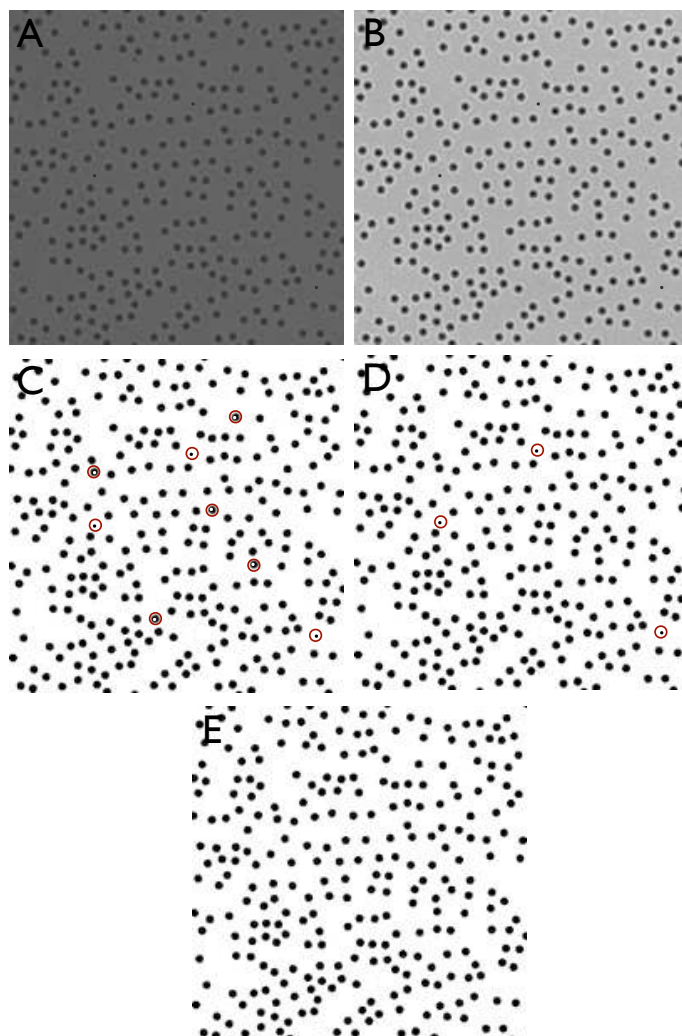


FIGURE 2.16: A. Zoom sur une image brute d'une expérience typique. La visualisation se fait en fluorescence pour avoir un bon contraste. B. Image obtenue après division par le background. Les inhomogénéités d'intensité sont éliminées. C. Seuillage pour obtenir une image binarisée. Des trous peuvent apparaître dans les particules dus aux potentielles inhomogénéités d'intensité au niveau des particules. D. Image obtenue après avoir rempli artificiellement ces trous. Des tâches noires n'ayant pas la taille des particules à détecter sont toujours présentes. Elles peuvent correspondre notamment à des petites impuretés présentes en solution ou apparaître au moment du seuillage (toujours en raison des inhomogénéités d'intensité). E. Image finale obtenue après application d'un filtre sur la taille et la forme géométrique des tâches noires à garder.

Comme précisé dans l'introduction de cette partie, les positions obtenues à chaque pas de temps pour une expérience typique d'écho correspondent à des données de 20 à 30 Go. Manipuler des fichiers de cette taille n'est pas faisable sur des temps raisonnables avec les ordinateurs commerciaux actuels. Afin de s'abstraire de cette contrainte, le VI permettant d'obtenir les positions des particules crée en sortie plusieurs fichiers, chacun correspondant à une séquence de 1000 images successives. Ces fichiers ont une taille typique de 150 Mo et sont donc facilement manipulables.

L'étape suivante de traitement de données est le tracking : les trajectoires des particules sont recomposées seulement à partir des positions de celles-ci à chaque pas de temps.

2.4.2 Tracking des particules

Principe du tracking

J'ai utilisé pour le tracking des gouttes la version Matlab de l'algorithme très connu de J.C. Crocker et D.G. Grier [17]. Cet algorithme est basé sur une minimisation de tous les déplacements possibles des gouttes entre 2 images consécutives.

Une contrainte est rajoutée sur ce problème de minimisation afin d'obtenir un algorithme convergeant rapidement : une borne supérieure est donnée par l'utilisateur sur le déplacement maximum qu'une particule peut parcourir entre 2 images. Cette borne supérieure doit être plus faible que la distance moyenne inter-particule afin que l'algorithme ne puisse confondre des particules. Ainsi, pour obtenir un bon tracking, c'est à dire recomposer les trajectoires d'une majorité des gouttes sur le temps complet de l'expérience, la fréquence d'acquisition doit être suffisamment élevée afin que le déplacement moyen des particules entre 2 images soit très petit devant la distance moyenne inter-particules. La fréquence d'acquisition doit être d'autant plus importante que la vitesse et la fraction surfacique des particules sont grandes. Pour mes expériences d'écho, filmer à 24 images/s s'est avéré suffisant pour pouvoir tracker aisément les gouttes.

Méthodes

L'une des difficultés de l'expérience d'écho est la manipulation de gros fichiers de données. En effet, la mémoire vive des ordinateurs actuels ne permet pas de conduire des calculs rapides sur des fichiers de 20 à 30 Go. Tracker les trajectoires des particules en une seule fois sur la durée totale des expériences n'était pas faisable sur des temps raisonnables. Pour donner un ordre d'idée, le temps pour obtenir les trajectoires à partir des positions sur toute la durée d'une expérience est de l'ordre d'une semaine si l'on ne fait pas attention à ce problème de taille de fichiers. Etant donné le nombre d'expériences conduites (~ 15), le temps passé pour simplement obtenir les trajectoires aurait donc été de ~ 15 semaines!

Afin de pallier ce problème de tailles de fichiers, j'ai décidé de conduire le tracking un peu différemment. L'idée est de séparer chaque expérience en

différentes parties de même durée et de tracker les trajectoires des gouttes dans chacun de ces intervalles de manière indépendante. Les trajectoires globales sont ensuite recomposées en réassociant les trajectoires obtenues dans chaque intervalle de temps.

Concrètement les positions à chaque pas de temps sont stockées dans des fichiers contenant les informations de 1000 images consécutives (notés : position1.txt, position1001.txt, position2001.txt,...). L'obtention des trajectoires globales se fait ensuite en 2 étapes :

1. Je tracke les trajectoires sur chacun de ces fichiers indépendamment. Je crée alors le même nombre de fichiers "tracking" où les particules sont cette fois labellisées (tracking1.txt, tracking1001.txt, tracking2001.txt,...). A ce stade, les labels donnés à chaque particule sont indépendants entre les différents fichiers tracking.txt.
2. Afin d'obtenir les trajectoires sur toute la durée de l'expérience, il est donc nécessaire de réassocier les labels entre les différents intervalles de temps. Cela se fait en comparant les positions sur la dernière image de l'intervalle $n - 1$ et sur la première image de l'intervalle n . Le tracking effectué pendant la première étape se fait donc sur les fichiers positions ayant 1 image en commun : la dernière de l'intervalle $n - 1$ et la première de l'intervalle n .

Cette méthode m'a permis un gain de temps considérable sur le tracking des particules. En effet, en séparant les fichiers, le temps pour obtenir les trajectoires des particules pour l'ensemble des expériences a été réduit à ~ 1 semaine.

Problèmes associés à l'acquisition et solutions apportées

L'acquisition des films des expériences d'écho s'effectue à 24 images/s afin d'obtenir un tracking efficace. Or lors des expériences préliminaires, je me suis aperçu que les trajectoires obtenues n'étaient pas complètes. Ceci est illustré par la figure 2.17A, où est représenté l'histogramme des longueurs des trajectoires trackées pour un expérience test de 7400 images. Cet histogramme est piqué sur 3 valeurs : (i) quelques centaines de trajectoires correspondant à la totalité du film (7400 images) sont obtenues, (ii) environ 2300 trajectoires ont des longueurs de 3000 images, (iii) environ 2300 trajectoires ont des longueurs de 4400 images. Ces 2 derniers types de trajectoires correspondent en fait aux mêmes particules dont les trajectoires totales n'ont pas pu être obtenues. L'explication pour ces erreurs dans le tracking vient d'un problème lors de l'acquisition : l'enregistrement des images sur l'ordinateur ne se fait pas à une cadence régulière. De temps en temps, le système ne parvient pas à enregistrer plusieurs images de suite. Ces "chutes" du framerate impliquent par la suite un mauvais tracking : aux instants où ces images n'ont pas été enregistrées, les particules se déplacent sur des distances trop importantes pour que l'algorithme de tracking les reconnaissent.

Une astuce permet cependant de s'affranchir de ces chutes de framerate. L'idée est de s'abstraire des sauts trop importants dans le déplacement des particules entre 2 images dus à ces chutes de framerate. Pour cela, j'effectue

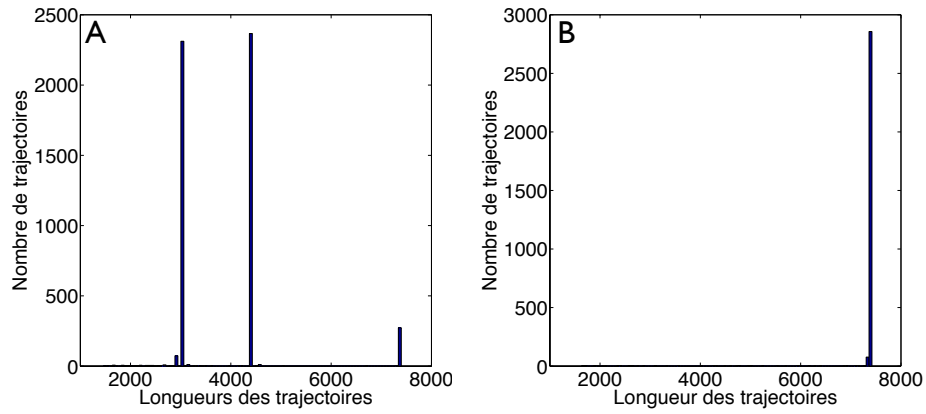


FIGURE 2.17: Histogrammes des longueurs des trajectoires obtenues en appliquant normalement l'algorithme de tracking (A) et en appliquant la méthode du centre de masse (B).

le tracking dans le référentiel du centre de masse des gouttes en soustrayant à chaque instant la position du centre de masse aux positions de toutes les particules. Ainsi je tracke le mouvement de particules diffusant autour d'une position moyenne. En effet, l'expérience d'écho consiste à appliquer un écoulement sinusoïdal à l'émulsion. La trajectoire de chacune des particules fluctuent alors autour d'une sinusoïde : en soustrayant la position du centre de masse, j'obtiens un système de particules "browniennes" diffusant autour de positions bien définies. Le problème est que la trajectoire du centre de masse ne peut être obtenue qu'en connaissant les trajectoires de toutes les particules... L'idée est donc de reconstruire la trajectoire du centre de masse sur la totalité de l'expérience à partir d'une seule période de la sinusoïde. Pour cela j'effectue les étapes suivantes :

1. Pendant l'expérience, j'enregistre dans un fichier le temps écoulé entre 2 prises d'images.
2. Je repère où sont les chutes du framerate dans le film effectué grâce au fichier précédent.
3. Je repère un intervalle de temps d'une période de sinusoïde où le framerate est stable.
4. Je tracke les particules pendant cette période de la sinusoïde. Cela me permet d'obtenir la trajectoire du centre de masse pendant cet intervalle de temps.
5. Je reconstruit la trajectoire "idéale" du centre de masse à partir de cette brique élémentaire obtenue sur une période. Pour cela je concatène cette trajectoire sur le nombre de cycles voulus (i.e. le nombre de période du films).

6. La dernière étape consiste à supprimer des points de cette trajectoire "idéale" afin de prendre en compte les chutes de framerate. Ceci se fait toujours grâce au fichier du temps écoulé entre 2 prises d'images.

Cette méthode fonctionne très bien. L'histogramme des longueurs de trajectoires obtenues avec cette méthode pour le même système que précédemment est représenté figure 2.17B : cette fois-ci environ 2900 trajectoires correspondant à la totalité du film sont obtenues.

Ce problème d'acquisition a été remarqué lors d'expériences préliminaires servant à caractériser et à comprendre le fonctionnement du tracking. La fréquence de chutes de framerate était alors très importante : 1 chute toutes les 200-300 images prises. Ceci était dû à l'ordinateur utilisé à ce moment là qui n'était pas assez puissant pour suivre la cadence imposée par la caméra. Pour remédier de manière définitive à ce problème, j'ai monté une machine suffisamment puissante avec des temps d'accès disque réduits afin de faire de l'acquisition sans de tels ennuis. La description de cette machine est en annexe 2.5.2. A noter que même avec cet ordinateur, j'ai continué d'appliquer la méthode du centre de masse pour le tracking. En effet, l'algorithme de J.C. Crocker et D.G. Grier est optimisé pour le tracking de particules browniennes : cette méthode permet donc de se placer dans des conditions où l'algorithme convergera plus rapidement.

Cette section clôt ce chapitre sur le design des expériences microfluidiques que j'ai effectuées pendant ces 3 ans. La mise en place de ces expériences s'est avérée compliquée car sous chacune d'elles se cache des subtilités non anticipées. Ces difficultés m'ont à plusieurs reprises découragé mais la satisfaction obtenue lorsque les résultats apparaissent n'en est que plus grande. Ces expériences m'ont permis notamment de répondre de manière quantitative à différents problèmes actuels concernant la dynamique de particules en interactions hydrodynamiques. Les résultats obtenus sur les différents systèmes étudiés sont présentés dans les chapitres suivants.

2.5 Annexes

2.5.1 Protocole de fabrication des vannes microfluidiques

Ce paragraphe est extrait du manuscrit de thèse de Naïs Coq [18].

Deux lithographies sont nécessaires pour fabriquer les deux canaux perpendiculaires d'un bloc vanne. Le canal fluide doit être de section arrondie pour se fermer complètement. Le moule correspondant est donc réalisé en résine positive MAP 1275, qui donne le bon profil après cuisson. Rappelons qu'une résine est dite positive si les zones exposées aux UV sont dissoutes lors du développement. Le protocole de lithographie du canal fluide est schématisé figure 2.18A. Le canal fluide doit avoir une section de rapport ~ 10 , ici $20\text{ }\mu\text{m}$ de haut pour $200\text{ }\mu\text{m}$ de large. Le canal de contrôle, de section rectangulaire classique, est réalisé à partir d'un moule de résine négative (SU 8). Sa hauteur n'est pas critique. Nos canaux de contrôle mesurent 50 à $70\text{ }\mu\text{m}$ de haut pour $200\text{ }\mu\text{m}$ de large.

Les deux canaux sont fabriqués séparément. Le PDMS du canal fluide est sous-réticulé, puis les deux canaux sont collés par gradient de réticulation. Ces étapes sont détaillées sur la figure 2.18B.

Une fois démoulé et percé, le bloc vanne est refermé par une épaisseur de PDMS. Une couche de PDMS est spin-coatée sur une lame de verre, et laissée 30 minutes à 73°C (sous-réticulation). Le bloc vanne est déposé sur la surface, et l'ensemble est mis au four une nuit. Ce type de collage permet d'éviter quelques problèmes liés au collage plasma, dans le cas duquel la fermeture du canal fluide est parfois irréversible.

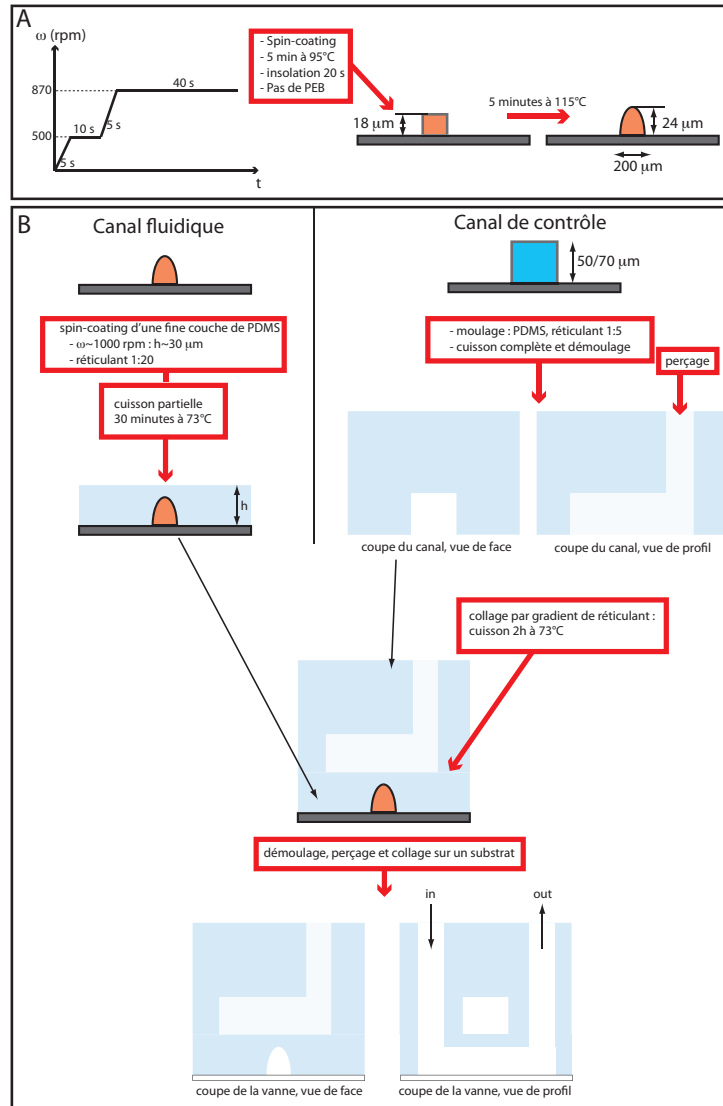


FIGURE 2.18: Fabrication des vannes. Les schémas ne sont pas à l'échelle. A : Protocole de lithographie pour la résine positive. Une dernière étape de cuisson modifie la forme des canaux. B : Lithographie multicouche, avec collage par gradient de réticulation. L'entrée du canal fluide (in) est ensuite connectée au réservoir de fluide, et la sortie (out) au canal d'étude.

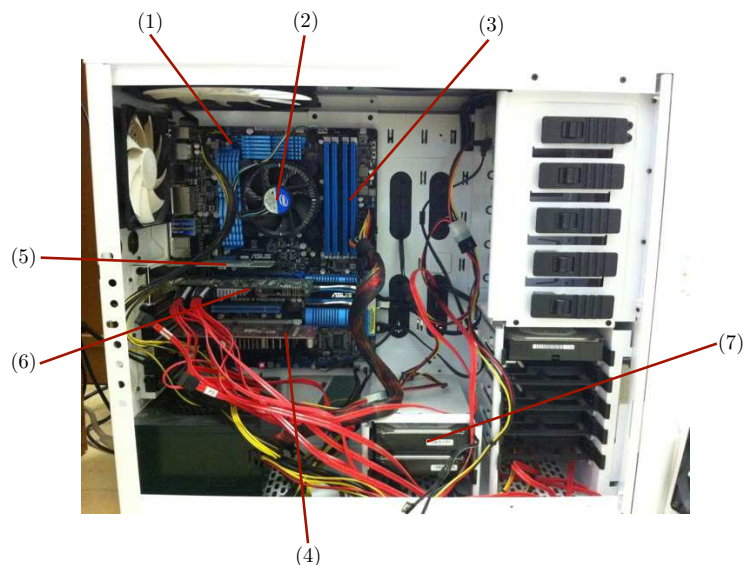


FIGURE 2.19: Photographie de l'ordinateur servant principalement à l'acquisition des films des expériences.

2.5.2 Description de la machine servant à l'acquisition des films

L'ordinateur servant à l'acquisition des films a été monté à partir des éléments dans la liste qui suit. La figure 2.19 présente une photographie de cette machine avec localisation de ces différents éléments.

1. 1 carte mère Asus P8Z68-V
2. 1 processeur Intel Core I7-2600K (3.4 GHz)
3. 4 barrettes de 2 Go de RAM
4. 1 carte graphique Asus V998
5. 1 carte réseau Intel PRO/1000 CT Desktop Adapter Single Port
6. 1 carte LSI MegaRAID SAS 9265-8i
7. 4 disques durs SSD Vertex 4 250 Go
8. 1 disque dur Western Digital 320 Go
9. 1 lecteur/graveur DVD Asus
10. 1 boîtier NZXT Phantom

Les 4 disques durs SSD sont installés en montage RAID 0 grâce à la carte MegaRAID. Ce montage RAID 0 permet de quadrupler la vitesse d'écriture sur ces disques. L'acquisition des films se fait donc sur ces disques. De plus, j'ai installé 8 Go de RAM afin d'avoir des performances suffisantes pour le traitement de données en particulier la détection et le tracking des particules.

2.6 Bibliographie

- [1] Bartolo, D., Degré, G., Nghe, P. & Studer, V. Microfluidic stickers. *Lab on a chip* **8**, 274–9 (2008).
- [2] Piruska, A. *et al.* The autofluorescence of plastic materials and chips measured under laser irradiation. *Lab on a chip* **5**, 1348–54 (2005).
- [3] Unger, M. A., Chou, H.-P., Thorsen, T., Scherer, A. & Quake, S. R. Monolithic Microfabricated Valves and Pumps by Multilayer Soft Lithography. *Science* **288**, 113–116 (2000).
- [4] Galas, J.-C., Bartolo, D. & Studer, V. Active connectors for microfluidic drops on demand. *New Journal of Physics* **11**, 075027 (2009).
- [5] Levaché, B., Azoune, A., Bourrel, M., Studer, V. & Bartolo, D. Engineering the surface properties of microfluidic stickers. *Lab on a chip* **12**, 3028–31 (2012).
- [6] Thorsen, T., Roberts, R. W., Arnold, F. H. & Quake, S. R. Dynamic Pattern Formation in a Vesicle-Generating Microfluidic Device. *Physical Review Letters* **86**, 4163–4166 (2001).
- [7] Anna, S. L., Bontoux, N. & Stone, H. a. Formation of dispersions using “flow focusing” in microchannels. *Applied Physics Letters* **82**, 364 (2003).
- [8] Garstecki, P., Fuerstman, M. J., Stone, H. a. & Whitesides, G. M. Formation of droplets and bubbles in a microfluidic T-junction-scaling and mechanism of break-up. *Lab on a chip* **6**, 437–46 (2006).
- [9] Ward, T., Faivre, M., Abkarian, M. & Stone, H. a. Microfluidic flow focusing : drop size and scaling in pressure versus flow-rate-driven pumping. *Electrophoresis* **26**, 3716–24 (2005).
- [10] Garstecki, P. *et al.* Formation of monodisperse bubbles in a microfluidic flow-focusing device. *Applied Physics Letters* **85**, 2649 (2004).
- [11] Garstecki, P., Stone, H. & Whitesides, G. Mechanism for Flow-Rate Controlled Breakup in Confined Geometries : A Route to Monodisperse Emulsions. *Physical Review Letters* **94**, 164501 (2005).
- [12] Yobas, L., Martens, S., Ong, W.-L. & Ranganathan, N. High-performance flow-focusing geometry for spontaneous generation of monodispersed droplets. *Lab on a chip* **6**, 1073–9 (2006).
- [13] Nisisako, T. & Torii, T. Microfluidic large-scale integration on a chip for mass production of monodisperse droplets and particles. *Lab on a chip* **8**, 287–93 (2008).
- [14] Seemann, R., Brinkmann, M., Pfohl, T. & Herminghaus, S. Droplet based microfluidics. *Reports on progress in physics. Physical Society (Great Britain)* **75**, 016601 (2012).
- [15] Champagne, N. *Dynamique de trafic dans des réseaux microfluidiques : embouteillages, chocs et avalanches*. Ph.D. thesis (2011).

- [16] Abbyad, P., Dangla, R., Alexandrou, A. & Baroud, C. N. Rails and anchors : guiding and trapping droplet microreactors in two dimensions. *Lab on a chip* **11**, 813–21 (2011).
- [17] Crocker, J. & Grier, D. Methods of digital video microscopy for colloidal studies. *Journal of colloid and interface science* **179**, 298–310 (1996).
- [18] Coq, N. *Battement de flagelles artificiels : dynamique individuelle et collective*. Ph.D. thesis (2010).

CHAPITRE 3

Propagation d'ondes de densité et structure statique d'une émulsion bidimensionnelle simplement advectée

Lorsqu'une particule solide ou déformable est advectée par un fluide porteur dans un milieu confiné, la friction sur les parois confinantes (induite par l'échange de quantité de mouvement) implique que la vitesse de la particule est différente de la vitesse locale du fluide. Autrement dit, la présence d'une particule de taille comparable aux dimensions du confinement va entraîner une modification plus ou moins locale de l'écoulement. De facto, lorsqu'un grand nombre de particules est advecté dans une telle géométrie, celles-ci sont a priori en interactions hydrodynamiques.

Une manifestation intrigante de ces interactions hydrodynamiques dans un écoulement bouchon est la propagation de phonons dans un train de gouttes régulièrement espacées (cristal 1D), quand bien même le système n'est caractérisé par aucune inertie ni interactions potentielles [1]. Cette étude du groupe de Bar-Ziv a permis de valider une modélisation simple des interactions hydrodynamiques dans une cellule de Hele-Shaw, système utilisé pour les recherches présentées dans ce chapitre et le suivant.

Ainsi, avant de présenter les résultats de ce chapitre, je commence par un bref rappel concernant les écoulements et les interactions hydrodynamiques dans une cellule de Hele-Shaw.

3.1 Écoulement et interactions hydrodynamiques dans une cellule de Hele-Shaw

Une cellule de Hele-Shaw est formée par deux plaques parallèles séparées d'une distance h très faible devant les dimensions des plaques dans le plan de

l'écoulement. On peut montrer que, dans ce type de géométrie, un écoulement stationnaire, à faible nombre de Reynolds et moyenné sur la hauteur h est potentiel. En effet, l'équation pour le champ de vitesse hydrodynamique s'écrit :

$$\langle \mathbf{v}(x, y) \rangle_h = -\frac{h^2}{12\eta} \nabla_{\parallel} P \quad (3.1)$$

où $\langle \mathbf{v}(x, y) \rangle_h$ est le champ de vitesse moyenné sur la hauteur h , P le champ de pression, η la viscosité du fluide et ∇_{\parallel} le gradient dans le plan de l'écoulement (plan parallèle aux plaques). Le calcul complet pour arriver à cette expression se trouve en annexe 3.3.1. Ainsi l'écoulement dans une cellule de Hele-Shaw dans la limite évoquée plus haut découle effectivement d'un potentiel des vitesses $\phi = -\frac{h^2}{12\eta} P$.

Un objet advecté par un fluide porteur dans ce type de géométrie et avançant moins vite que le fluide va se comporter comme un obstacle perturbant cet écoulement potentiel. Ainsi une goutte non déformable (i.e. à bas nombre capillaire) aplatie selon la hauteur (avec un rayon $R > h/2$) se comportera comme un obstacle cylindrique d'axe perpendiculaire à l'écoulement. En faisant de manière classique un développement multipolaire de cette perturbation, il est possible de montrer que le champ résultant de l'obstacle cylindrique découle d'un potentiel dipolaire, voir annexe 3.3.2. Le potentiel total comprenant l'écoulement simple à une vitesse U dans la direction (Ox) ainsi que la perturbation dipolaire s'écrit alors :

$$\phi = Ur \cos(\theta) \left(1 + \frac{R^2}{r^2} \right) \quad (3.2)$$

Ces perturbations dipolaires induites par chacune des gouttes dans une émulsion bidimensionnelle induisent des interactions hydrodynamiques à longue portée ($\sim 1/r^2$) entre celles-ci. Ces interactions donnent lieu à une dynamique complexe pour les particules. L'étude de cette dynamique fait l'objet de la section suivante, où je présente les résultats expérimentaux et théoriques de notre groupe.

3.2 Résultats expérimentaux et théoriques

Dans cette section, je présente les résultats de nos travaux concernant la dynamique d'un ensemble de gouttes monodisperses en interactions hydrodynamiques s'écoulant dans une cellule de Hele-Shaw. L'objectif de ce travail est de décrire et de comprendre les structures spatio-temporelles apparaissant dans cette émulsion. Une vidéo, disponible à l'adresse https://blog.espci.fr/raphaeljeanneret/files/2013/10/video_S1.mov, illustre bien ce phénomène : des agrégats de particules se forment et se détruisent d'une manière continue au sein de l'émulsion. Le niveau de cohérence de ces structures est étudié dans l'article "Hydrodynamic fluctuations in confined particle-laden fluids" (*Phys. Rev. Lett.* **111**, 118301 (2013)), que j'insère tel quel dans la prochaine section en modifiant la mise en page afin qu'elle soit adaptée au format de ce

manuscrit. Dans un second temps, je caractérise en détail la structure statique des émulsions à travers l’étude de la fonction de corrélation de paire $g(r)$. Cette description constitue une information très importante pour le chapitre suivant concernant l’expérience d’écho.

3.2.1 Hydrodynamic fluctuations in confined particle-laden fluids

Abstract

We address the collective dynamics of non-Brownian particles cruising in a confined microfluidic geometry and provide a comprehensive characterization of their spatiotemporal density fluctuations. We show that density excitations freely propagate at all scales, and in all directions even though the particles are neither affected by potential forces nor by inertia. We introduce a kinetic theory which quantitatively accounts for our experimental findings, demonstrating that the fluctuation spectrum of this non-equilibrium system is shaped by the combination of truly long-range hydrodynamic interactions and local collisions. We also demonstrate that the free propagation of density waves is a generic phenomenon which should be observed in a much broader range of hydrodynamic systems.

Je précise à ce stade que ma contribution à cet article concerne le design de la puce microfluidique utilisée ainsi que la réalisation des expériences (avec Nicolas Desreumaux). L’analyse des données a été conduite par ce dernier et la théorie a été développée conjointement par Nicolas Desreumaux, Jean-Baptiste Caussin, Eric Lauga et Denis Bartolo.

Introduction

Understanding the collective dynamics of non-Brownian particles in viscous fluids is a long-standing challenge in fluid mechanics. For example, many features of sedimentation in a quiescent fluid are still poorly understood. Rather than falling along straight lines, as an isolated particle does, sedimenting particles experience swirling motion correlated over large finite distance, the physical origin of which has been under debate for more than 30 years [2, 3]. The conceptual complexity of this collective dynamics contrasts with the formal simplicity of the (linear) Stokes equation that rules low-Reynolds-number flows. Immersed bodies generically affect both the momentum and the mass transfers of the fluid, even when not driven by external fields. As a result, long-range interactions arise between the particles due to the interplay between the local velocity of the fluid and the motion of the particles. They vanish only for uniform flows, for which the particles would be all advected at the same speed as the fluid, irrespective of their spatial distribution. Such a condition is never achieved when the fluid is confined by rigid walls or obstacles. Friction with the bounding walls causes strong distortions of the flow field, inducing effective interactions bet-

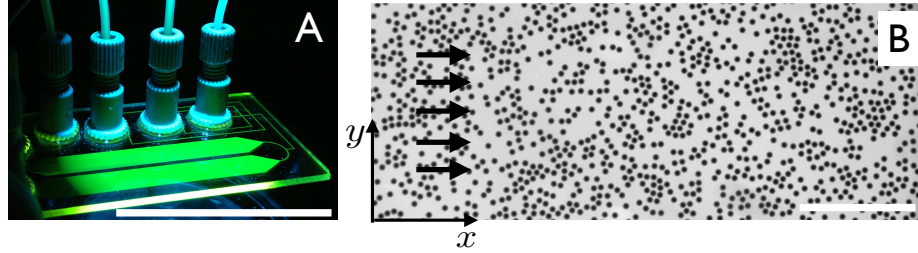


FIGURE 3.1: (A) : Picture of the microfluidic setup. During the experiments one of these two 5-cm long channels was continuously fed with monodisperse droplets. Scale bar : 5 cm. (B) : Typical snapshot of an experimental movie. The black arrows indicate the direction of the flow. Scale bar : $500\ \mu\text{m}$.

ween the particles [4, 5, 6, 7]. As it turns out the transport of particle-laden fluid through rigidly confined geometries is involved in a number of industrial and natural processes, including filtration [8], colloid deposition on solid surfaces [9, 10], droplet-based microfluidics [11, 12], blood micro-flows [13], protein motion in lipid membranes [4], bacteria swarming [14, 15]. Understanding the particle transport in confined films is a necessary first step toward the description of particle traffic in more complex geometries such as ordered, or random porous networks. Recently, pioneering experiments probed the propagation of density heterogeneities in bidimensional emulsions and droplet streams [1, 16]. Focusing on a semi-local quantity, the droplet density averaged over the channel width, Beatus et al revealed the propagation of longitudinal nonlinear density waves, Burgers shocks, resulting from the linear variation of the droplet speed with the local density [16]. However, this observation does not account for the complexity of the structural [17], and spatiotemporal fluctuations observed at all scales in rigidly confined particle-laden fluids, regardless of their specific geometry, composition, and driving mechanism [17, 18, 16, 14, 19].

Here we combine advanced microfluidic experiments and kinetic theory to shed light on the collective dynamics of particles advected in shallow micro-channels. We first characterize their density fluctuations. We show that they freely propagate, at all scales and in all directions, in a dispersive manner. We then quantitatively demonstrate how the interplay of hydrodynamic and steric interactions shape the fluctuation spectrum of the linear density waves. Finally, we show how bidimensional microfluidic emulsions can be effectively used as a proxy to probe collective effects in a much broader range of hydrodynamic systems including diffusiophoretic suspensions, foams, or emulsions, cruising through porous media, and confined sedimentation.

Results

We developed a model microfluidic experiment which made it possible to track the individual positions of hundred of thousands of identical droplets interacting hydrodynamically in a shallow channel. Briefly, the system consists of a monodisperse oil-in-water emulsion flowing in a shallow microchannel. The length and width of the channel, $L \times W = 5 \text{ cm} \times 5 \text{ mm}$, are much larger than its height, $h = 27 \pm 0.1 \mu\text{m}$, which compares with the droplet diameter, see Fig. 3.1. The emulsion is therefore confined in a quasi-2D geometry. The droplets are formed at a conventional flow-focusing junction followed by a dilution module. The fluid flow-rates are imposed by high-precision syringe pumps. Etched-glass microchips ensure that the channel dimensions are unaffected by the flow conditions. In addition, the geometry of the junction, and the range of flow rates, are chosen so that the formation of the droplet was unaffected by the dilution flow. Therefore we accurately controlled both the droplet radius, R_d , and the average area fraction, ϕ , occupied by the emulsion. Here, we report results obtained for $R_d = 16.7 \pm 0.3 \mu\text{m}$ ($R_d/h = 0.62$), and $0.21 < \phi < 0.56$. Varying the droplet sizes up to $R_d \sim 2h$ does not qualitatively change our measurements. The droplets are visualized using fluorescence imaging. For each experiment we tracked $\sim 10^5$ particle trajectories in a region close to the center of the main channel, Fig. 3.1B. For more details, see chapter 2 of this manuscript.

Without droplets, the fluid flow would be uniform along the x -direction in the observation region. This is evidenced by the linear trajectories followed by isolated droplets cruising along the channel. Conversely, even at the smallest surface fraction, the droplets undergo large fluctuations in their motion, as shown in the supplementary movie [20]. These fluctuations lead to the formation of particle clusters at all scales. These clusters are clearly seen to travel at a speed that is different from the mean droplet velocity. Density bands transverse to the flow are faster than the longitudinal ones. However, these clusters are transient structures, they form and break apart in a continuous fashion. Our purpose is to elucidate the physical mechanisms responsible for this complex and fluctuating dynamics. To quantify the spatiotemporal fluctuations of the droplet density field $\rho(\mathbf{r}, t)$, where $\mathbf{r} = (x, y)$, we measure its power spectrum. Introducing the Fourier transform of the local density, $\rho_{\mathbf{q}, \omega'} = \frac{1}{2\pi} \int \rho(\mathbf{r}, t) e^{i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{r} - \omega' t)} d\mathbf{r} dt$, the power spectrum is defined as $|\tilde{\rho}_{\mathbf{q}, \omega'}|^2$, where $\tilde{\rho}(\mathbf{r}, t) \equiv \rho(\mathbf{r}, t) - \langle \rho(\mathbf{r}, t) \rangle$. Practically, ρ is computed from the particle positions as $\rho(\mathbf{r}, t) \equiv \sum_i \mathcal{G}(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i(t))$, where $\mathbf{r}_i(t)$ is the position of the i^{th} droplet, and where \mathcal{G} is a Gaussian shape function.

In Fig 3.2A, we show a cut of a typical power spectrum in the (ω', q_x) plane. This example corresponds to $\phi = 0.39$, and to $q_y R_d = 0.2$. Several important comments are in order : (i) The power spectrum is localized in the Fourier space, which is the hallmark of propagative dynamics for the density fluctuations, as first noted in [16] for the specific case of the y -averaged density mode ($q_y = 0$). We stress that compression modes propagate even though the droplets do not interact via potential forces, and even though their inertia is negligible compared to the viscous friction at this scale. These “sound” modes originate only from

the hydrodynamic coupling between the advected particles; (ii) The curve on which the spectrum is peaked corresponds to the dispersion curve of the density waves. It deviates markedly from a straight line at moderate wavelengths. The hydrodynamic interactions do not merely renormalize the mean advection speed but cause the density fluctuations to propagate in a dispersive fashion; (iii) The global shape of the spectrum is conserved for every area fraction, and more surprisingly for every wave vector q_y provided that the wavelength remains larger than the particle size (see below).

In all that follows, we discard the trivial non-dispersive contribution due to the advection at the mean droplet velocity $\langle \mathbf{v}_d \rangle$. We focus on the density fluctuations in the frame moving at $\langle \mathbf{v}_d \rangle$, and introduce the reduced pulsation $\omega \equiv \omega' - \langle v_d \rangle q_x$. Experiments done at different area fractions, and thus at different continuous phase velocities due to dilution, are compared by normalizing the wave vectors by R_d^{-1} , and the pulsations by v_F/R_d , where v_F is the velocity of the continuous phase imposed by the syringe pumps. Fig 3.2B shows a typical dispersion relation : $\omega = \omega(q_x, q_y)$, obtained for $\phi = 0.39$. The spectrum is symmetric along the q_y direction as expected from the symmetry of the system. Furthermore, density fluctuations propagate in all directions except in the one strictly transverse to the flow ($q_x = 0$). In addition, the dispersion curve displays an axial symmetry with respect to the q_y -axis. It is worth noting that the sign of the associated phase velocity changes as q_x increases. The long wavelength excitations propagate downstream, while the short wavelength excitations propagate upstream.

In Fig. 3.2C, we show that once renormalized by ϕ , the dispersion relations corresponding to 12 different area fractions collapse on a single master curve. This noticeable collapse is not specific to the purely longitudinal waves and occurs for all the possible q_y values. Our systematic rescaling demonstrate that a unique set of physical mechanisms dictates the collective motion of the droplets, at all scales, regardless of the droplet density.

We now propose a theoretical model which quantitatively accounts for our experimental findings. The instantaneous configuration of the emulsion is fully determined by the positions of N identical axisymmetric particles : $\mathbf{r}_i(t)$, $i = 1 \dots N$. The dynamics of an isolated particle has proven to be correctly captured by a constant mobility coefficient, μ , defined as $\dot{\mathbf{r}}_i(t) \equiv \mu \mathbf{v}(\mathbf{r}_i, t)$ where $\mathbf{v}(\mathbf{r}, t)$ is the in-plane fluid velocity field averaged over the channel height in the absence of the particle i [1, 16]. In our quasi-2D geometry, the fluid flow is potential and derives from the local pressure field, $\mathbf{v} = -G \nabla P$, where $G = h^2/12\eta$, η being the viscosity of the aqueous phase; $\mathbf{v}(\mathbf{r}, t)$ is then fully determined when considering the incompressibility condition, and the no-flux boundary conditions through the sidewalls of the channel. In a particle-free channel, the velocity field would be uniform, $\mathbf{v} = v_F \hat{\mathbf{x}}$. The particles are not passive tracers ($\mu < 1$), therefore their relative motion with respect to the fluid results in a dipolar disturbance of the surrounding flow [4, 5]. The potential dipolar perturbation, $\mathbf{v}^{\text{dip}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_i(t))$, induced at the position \mathbf{r} by a particle located at $\mathbf{r}_i(t)$ is defined by the modified

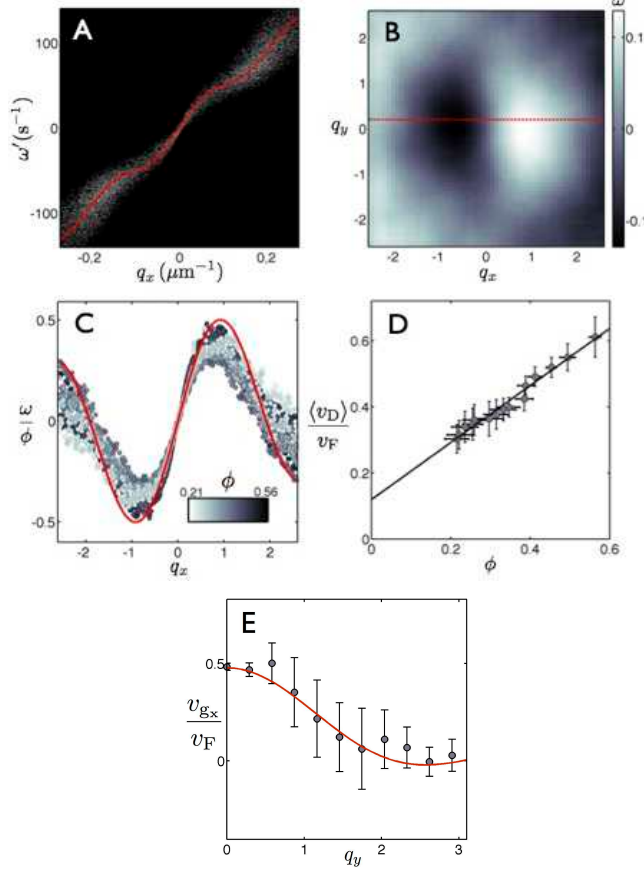


FIGURE 3.2: (A) : Grayscale power spectrum of the density fluctuations plotted in the (q_x, ω') plane for $q_y = 0.2/R_d$, $\phi = 0.39$, and $v_F = 1$ mm/s. Solid line : theoretical prediction for the location of the dispersion curve. (B) : Experimental dispersion curve $\omega(q_x, q_y)$, $\phi = 0.39$. Recall that units are chosen so that $R_d = 1$, and $v_F = 1$. Given the size of the observation window, the smallest finite value for q is given by $qW = 11.6$. The dotted line indicates the q_y value corresponding to the power spectrum shown in A. (C) : Renormalized dispersion relations in the moving frame, $q_y = 0$. Circles : experimental data, solid line : theoretical prediction, Eq. 3.8, with no adjustable parameter. (D) : Variations of the mean droplet velocity with ϕ . Circles : experimental data. Solid line : best linear fit. The error bars account for statistical fluctuations, and correspond to the standard deviation. (E) : v_{gx} plotted versus q_y at $q_x = 0$. Circles : experimental data for $\phi = 0.56$. Solid line : Theoretical prediction with no adjustable parameter deduced from Eq. 3.8. The error bars correspond to a 95% confidence interval in the measurement of v_{gx} from the slope of the dispersion curve.

incompressibility relation

$$\nabla \cdot \mathbf{v}^{\text{dip}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}_i(t)) = \sigma \partial_x \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_i(t)), \quad (3.3)$$

where σ is the dipole strength ($\sigma > 0$). In order to establish the equations of motion of the N particles, we now assume the dipolar disturbances to be pairwise additive. This yields $\dot{\mathbf{r}}_i(t) = \mu v_F \hat{\mathbf{x}} + \mu \sum_{j \neq i} \mathbf{v}^{\text{dip}}(\mathbf{r}_i(t), \mathbf{r}_j(t))$. We now move from these N coupled equations to an hydrodynamic description for the particle density field $\rho(\mathbf{r}, t)$. $\rho(\mathbf{r}, t)$ obeys the conservation equation

$$\partial_t \rho(\mathbf{r}, t) + \nabla \cdot \mathbf{j}(\mathbf{r}, t) = 0. \quad (3.4)$$

In order to relate the local particle current $\mathbf{j}(\mathbf{r}, t)$ to the local structure of the suspension, we used a conventional kinetic theory framework [21, 22]

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}, t) = \mu \rho(\mathbf{r}, t) \mathbf{v}_F + \mu \int d\mathbf{r}' \mathbf{v}^{\text{dip}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \rho^{(2)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t), \quad (3.5)$$

where $\rho^{(2)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', t)$ is the two-point distribution function. We now assume that the particle positions decorrelate over a distance as small as one particle diameter. In addition to this mean-field approximation, we also explicitly account for the steric repulsion between the particles via the following closure relation for Eq. 3.5

$$\rho^{(2)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \begin{cases} 0 & \text{if } |\mathbf{r} - \mathbf{r}'| < 2R_d, \\ \rho(\mathbf{r})\rho(\mathbf{r}') & \text{if } |\mathbf{r} - \mathbf{r}'| \geq 2R_d, \end{cases} \quad (3.6)$$

where R_d is the radius of a particle. Eqs. 3.5 and 3.6 define the equations of motion for the particle-density field. In principle, the effective extent of the excluded volume could be larger than the particle radius due to short-range intermolecular repulsions, and lubrication forces. However no measurable difference with the actual droplet radius could be observed in our experiments. We now focus on the dynamics of small density fluctuations, $\tilde{\rho}(\mathbf{r}, t)$, around an homogeneous state : $\tilde{\rho}(\mathbf{r}, t) \equiv \rho(\mathbf{r}, t) - \rho_0$, where $\rho_0 = \langle \rho(\mathbf{r}, t) \rangle = \phi/(\pi R_d^2)$. As done in our experiments, we work in the frame moving at the mean droplet velocity $\langle \mathbf{v}_d \rangle = \mu v_F \hat{\mathbf{x}} + \mu \rho_0 \int_{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'| \geq 2R_d} \mathbf{v}^{\text{dip}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') d\mathbf{r}'$. At leading order in $\tilde{\rho}$, and combining Eq. 3.5 and Eq. 3.6 ansatz, the current functional that captures both the hydrodynamic interactions (long-range) and the contact interactions (short-range) remains non-local : $\tilde{\mathbf{j}}(\mathbf{r}, t) \equiv \mu \rho_0 \int_{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'| \geq 2R_d} \mathbf{v}^{\text{dip}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \tilde{\rho}(\mathbf{r}', t) d\mathbf{r}'$. However, using Eq. 3.3 and focusing on particles far from the sidewalls, then $\nabla \cdot \tilde{\mathbf{j}}$ takes a simple local form

$$\nabla \cdot \tilde{\mathbf{j}}(\mathbf{r}, t) = -\frac{\mu \rho_0 \sigma}{4\pi R_d} \int_0^{2\pi} \tilde{\rho}(\mathbf{r} - 2R_d \hat{\mathbf{r}}') \cos \theta' d\theta', \quad (3.7)$$

where, since $R_d \ll W$, we have used the expression of the dipolar perturbation corresponding to an unbounded domain [5], $\mathbf{v}^{\text{dip}}(\mathbf{r}, \mathbf{r} + 2R_d \hat{\mathbf{r}}') \cdot \hat{\mathbf{r}}' = -(\sigma \cos \theta')/8\pi R_d^2$, with $\hat{\mathbf{r}}' \equiv \cos \theta' \hat{\mathbf{x}} + \sin \theta' \hat{\mathbf{y}}$. We now look for plane wave solutions $\tilde{\rho}(\mathbf{r}, t) = \sum_{\mathbf{q}} \tilde{\rho}_{\mathbf{q}} \exp(i\omega t - i\mathbf{q} \cdot \mathbf{r})$ of Eq. 3.4. After some elementary algebra

we infer their dispersion relation, which is our main theoretical result

$$\omega = (\mu\sigma\rho_0)q_x \frac{J_1(2qR_d)}{2qR_d}, \quad (3.8)$$

where J_1 is the first Bessel function. As ω is real, this relation implies that density waves freely propagate in the channel in qualitative agreement with our experimental observations. It is worth noting that since $\nabla \cdot \mathbf{j}$ is a local quantity, the form of the dispersion relation is generic, and does *not* depend on the channel size, and geometry. In addition, the linear variations of ω with ρ_0 explain the collapse of the normalized dispersion relations on a single master curve over the entire range of wave vectors (Fig. 3.2C). We now move to a quantitative comparison between our theoretical predictions and our experimental measurements. Eq. 3.8 is fully determined by two physical parameters : the droplet radius R_d , and $\mu\sigma\rho_0$ that quantifies the strength of the hydrodynamic couplings. In order to determine this latter parameter, we exploit another specific feature of the hydrodynamic interactions. Due to their symmetry, the sum of all the dipolar perturbations would leave the mean droplet velocity unchanged in an isotropic and homogeneous system. However, in anisotropic-channel geometries, $\langle \mathbf{v}_d \rangle$ increases linearly with the mean density irrespective of the channel size [12]. At 0th order in $\tilde{\rho}$, $\langle \mathbf{v}_d \rangle = \mu v_F \hat{\mathbf{x}} + \frac{1}{2}(\mu\sigma\rho_0)\hat{\mathbf{x}}$. Importantly this relation provides a direct means to measure independently the last unknown parameter of our theory. The linear increase of the measured value of $\langle v_D \rangle$ with ρ_0 appears clearly in Fig. 3.2D. The strength of the hydrodynamic coupling ($\mu\sigma\rho_0$) can thus be inferred from a linear fit (see Fig. 3.2D). We superimposed our theoretical predictions for the dispersion relation, Eq. 3.8, both in the laboratory frame and in the frame moving at $\langle \mathbf{v}_d \rangle$ in Figs. 3.2A and 3.2C. We find that the agreement between the theory and the experiments is excellent over a wide range of wave vectors, and of area fractions. Without any free fitting parameters, our model quantitatively captures the dispersive nature of the density fluctuations observed in the flowing emulsions.

To gain additional physical insight into the propagation of the density waves, it is worth looking at the small- q expansion of Eq. 3.8 : $\omega = \frac{1}{2}\mu\sigma\rho_0 q_x [1 - \frac{1}{2}(qR_d)^2] + \mathcal{O}((qR_d)^4)$. At leading order, this relation is non-dispersive (linear) whatever the direction of propagation. The phase velocity scales linearly with the magnitude of the dipolar coupling σ . In addition, it does not depend explicitly on R_d , which implies that the small- q excitations propagate only due to the long-range hydrodynamic interactions between the particles. Conversely, the dispersive term in $\omega(\mathbf{q})$ explicitly depends on the particle radius. At high q , the propagation of the density waves is set by the combination of the excluded volume interactions and the angular symmetry of the hydrodynamic couplings. To introduce our last quantitative results, we recall that one of the most striking feature observed in the flowing emulsions is the propagation of vertical density bands which propagate at a significantly faster speed than the mean droplet flow, see supplemental movie [20]. An homogeneous vertical band spanning the entire width of the channel corresponds to the linear superposition of plane waves associated with $q_y = 0$, and with q_x 's distributed around $q_x = 0$. In the frame

moving at $\langle \mathbf{v}_d \rangle$, their speed is given by the x -component of the group velocity $v_{g_x}(q_x, q_y) = \partial\omega/\partial q_x$ evaluated at $q = 0$. In Fig. 3.2E, we plot the experimental values of $v_{g_x}(0, q_y)$, which we measured from the slope at the origin of the dispersion curves (as the ones shown in Fig. 3.2C). Again the agreement with the theoretical curve deduced from Eq. 3.8 is excellent. This plot reveals that the density bands extended across the entire channel width are the fastest and propagate at velocities 1.5 higher than the mean droplet flow, thereby making them highly visible on the experimental movies.

Conclusion

To close this letter we further stress on the relevance of our results to a much broader range of physical systems. Two ingredients dictate the collective behavior of the confined emulsions : (i) the hydrodynamic interactions between the particles result from dipolar perturbations to the mean flow, (ii) the particles have a finite size. As it turns out these two features are shared by a number of very distinct hydrodynamic systems. A first class of example concern the transport of particles in porous media. Regardless of the spatial dimension (2D or 3D), the fluid flow in a porous network is a potential flow at scales larger than the typical pore size. In addition, it has been recently shown that when particles locally obstruct the porous network they induce a dipolar perturbation to the velocity field [18]. Therefore, the dispersive propagation of density excitations is expected to be found in particle filters, blood micro-vessels, soils, etc. It is also worth noting that the dipolar perturbations to the flow found in Hele-Shaw and in network geometries are not restricted to particles advected by the surrounding fluid. Sedimenting particles, rising bubbles and even self-propelled particles would move faster than the (confined) host fluid, thereby inducing dipolar perturbations in the far field as well. The same collective phenomenology would be found except that the speed of the density waves should have the opposite signs, and that the mean particle velocity should decay with the volume fraction. As a last example, we point that particles diffusiophoretically transported by an homogeneous solute gradient [23] should also display a very similar propagative dynamics, as they also induce a weak far field disturbance that has a dipolar symmetry [24]. This last example makes it clear that confinement is not a requirement to observe the propagation of dispersive waves. The model microfluidic experiment that we characterized and described in a quantitative fashion should be seen as a proxy to probe generic collective effects in particle-laden fluids driven out of equilibrium.

3.2.2 Structure statique d’une émulsion bidimensionnelle simplement advectée

Je présente ici des résultats sur la structure statique de l’émulsion bidimensionnelle simplement advectée que j’ai obtenus ultérieurement à la publication de l’article présenté précédemment. La structure est explorée via la fonction de corrélation de paire. Cette fonction $g(r)$ décrit comment varie la densité d’un

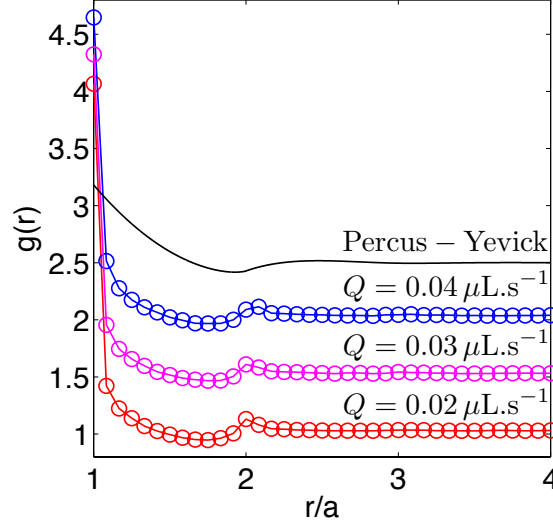


FIGURE 3.3: Fonction de corrélation de pair $g(r)$ d'une émulsion simplement advectée pour différents débits imposés à la phase continue. Les courbes sont décalées verticalement d'une valeur constante (0.5) pour une meilleure visibilité. La fonction de corrélation de pair dans l'approximation de Percus-Yevick est aussi tracée afin de comparer l'émulsion à un gaz de sphères dures.

système de particules en fonction de la distance r à une particule de référence. Elle est idéale pour caractériser la structure statique d'un ensemble de particules.

Les variations de $g(r)$ en fonction de la distance adimensionnée r/a (a est le diamètre des particules) sont présentées figure 3.3 pour 3 débits différents imposés à la phase continue ($Q = 0.02; 0.03$ et $0.04 \mu\text{L.s}^{-1}$) et pour une fraction surfacique $\phi = 0.36$. Cette fraction surfacique correspond à celle utilisée pour mon expérience d'écho et permet donc une comparaison directe avec les structures obtenues dans le cas d'un écoulement périodique, voir chapitre 4. Cependant, les fonctions de corrélation ne dépendent pas qualitativement de la fraction surfacique tant que le système est dilué. Le diamètre des particules dans cette étude est $a = 25.5 \pm 0.5 \mu\text{m}$. Les gouttes sont donc sphériques et occupe la hauteur entière du canal (hauteur du canal : $h = 27 \pm 0.1 \mu\text{m}$).

La structure obtenue est caractérisée par 2 pics localisés en $r = a$ et $r = 2a$. Le premier pic, très important, en $r = a$ traduit le comportement de sphères dures des gouttes. En effet, celles-ci sont non déformables en raison des faibles nombres capillaires utilisés $Ca \sim 10^{-4}$. En revanche, la structure obtenue n'est pas celle d'un gaz de sphères dures, comme en témoigne le tracé de la fonction de corrélation de paire dans l'approximation de Percus-Yevick à la même concentration. Le pic en $r = 2a$ traduit en fait, dans ce système dilué, l'exis-

tence d'interactions effectives attractives à courte portée entre les particules. Au dessus de $r = 2a$ les positions des gouttes ne sont plus du tout corrélées. L'existence du pic en $r = 2a$ peut faire penser que les gouttes subissent des interactions physico-chimiques attractives à courte portée caractéristiques du système expérimental et conduisant à l'adhésion des gouttes entre elles. Or comme le montre la figure 3.3, la structure ne dépend pas du débit imposé à la phase continue. De plus, ce type de structure a déjà été reporté par Rouyer *et al* en 2000 [17] dans un système fondamentalement différent : un lit fluidisé bidimensionnel de disques rigides. Ceci prouve que le pic en $r = 2a$ est une conséquence directe des interactions hydrodynamiques entre les gouttes.

L'étude de la structure statique de l'émulsion bidimensionnelle constitue la dernière partie de ce chapitre consacré à la dynamique d'un ensemble de gouttes s'écoulant dans une cellule de Hele-Shaw. Je vais me servir de cette étude dans le prochain chapitre relatant mon expérience d'écho afin de comparer les structures obtenues lorsque l'émulsion subit cette fois un écoulement périodique.

3.3 Annexes

3.3.1 Ecoulement dans une cellule de Hele-Shaw

Une cellule de Hele-Shaw est formée par deux plaques parallèles séparées d'une distance h très faible devant les dimensions des plaques dans le plan de l'écoulement, voir figure 3.4. Je vais montrer que, à faible nombre de Reynolds, l'écoulement dans une cellule de Hele-Shaw, moyenné sur la hauteur h , est un écoulement potentiel.

L'équation de conservation de la masse s'écrit :

$$\frac{\partial v_x}{\partial x} + \frac{\partial v_y}{\partial y} + \frac{\partial v_z}{\partial z} = 0 \quad (3.9)$$

Les échelles de longueur dans la direction (Oz) sont très faibles devant celles dans le plan (xOy) . En effet, par définition d'une cellule de Hele-Shaw, $h \ll L$. On peut en déduire un ordre de grandeur de la vitesse selon (Oz) à partir de l'équation de conservation de la masse :

$$v_z \approx \frac{h}{L} v_{x(y)} \ll v_{x(y)} \quad (3.10)$$

Ainsi la vitesse dans la direction (Oz) est très petite comparée aux vitesses dans le plan (xOy) . On peut donc considérer que l'écoulement est parallèle au plan (xOy) et que $v_z = 0$.

À bas nombre de Reynolds et en régime stationnaire, l'équation régissant la dynamique du liquide est l'équation de Stokes :

$$\eta \Delta \mathbf{v} = \nabla P \quad (3.11)$$

Le même argument sur les échelles de longueur du problème permet de faire les approximations suivantes :

$$\frac{\partial^2 v_{x(y)}}{\partial x^2} \ll \frac{\partial^2 v_{x(y)}}{\partial z^2} \quad \text{et} \quad \frac{\partial^2 v_{x(y)}}{\partial y^2} \ll \frac{\partial^2 v_{x(y)}}{\partial z^2} \quad (3.12)$$

L'équation de Stokes se réécrit donc :

$$\eta \frac{\partial^2 v_x}{\partial z^2} = \frac{\partial P}{\partial x} \quad (3.13)$$

$$\eta \frac{\partial^2 v_y}{\partial z^2} = \frac{\partial P}{\partial y} \quad (3.14)$$

$$\frac{\partial P}{\partial z} = 0 \quad (3.15)$$

D'après (3.15), la pression ne dépend que des coordonnées x et y . On peut ainsi résoudre les équations (3.13) et (3.14) en effectuant une séparation des variables sur la vitesse :

$$\mathbf{v}(x, y, z) = \mathbf{u}(x, y) f(z) \quad (3.16)$$

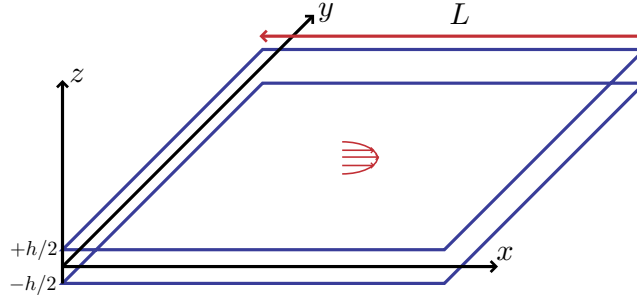


FIGURE 3.4: Schéma d'une cellule de Hele-Shaw de hauteur h . Les échelles de longueurs dans le plan (xOy) sont très grandes comparées à la hauteur : $h \ll L$. Le profil d'écoulement parabolique dans la direction (Oz) est représenté en rouge.

Cette séparation des variables implique :

$$\frac{\partial^2 f}{\partial z^2} = A \quad (3.17)$$

où $A = \frac{1}{\eta u_x} \frac{\partial P}{\partial x} = \frac{1}{\eta u_y} \frac{\partial P}{\partial y}$ est une constante. La résolution de l'équation (3.17) avec les conditions aux limites de non-glissement sur les plaques donne :

$$f(z) = A \frac{h^2}{8} \left[\left(\frac{z}{h/2} \right)^2 - 1 \right] \quad (3.18)$$

On obtient finalement l'équation suivante pour le champ de vitesse :

$$\mathbf{v}(x, y, z) = \frac{h^2}{8\eta} \left[\left(\frac{z}{h/2} \right)^2 - 1 \right] \nabla_{\parallel} P \quad (3.19)$$

où ∇_{\parallel} indique que seules les composantes selon (Ox) et (Oy) du gradient sont à prendre en compte. Si l'on calcule maintenant la moyenne sur la hauteur h de l'équation (3.19), le résultat final est le suivant :

$$\langle \mathbf{v}(x, y) \rangle_h = -\frac{h^2}{12\eta} \nabla_{\parallel} P \quad (3.20)$$

La vitesse moyennée sur la hauteur h découle donc d'un potentiel $\phi = -\frac{h^2}{12\eta} P$.

3.3.2 Ecoulement potentiel autour d'un obstacle cylindrique

Dans l'annexe précédente, j'ai montré que l'écoulement dans une cellule de Hele-Shaw correspond à un écoulement potentiel pour la vitesse moyennée sur la hauteur de la cellule. Dans cette section, je vais montrer que la présence d'un

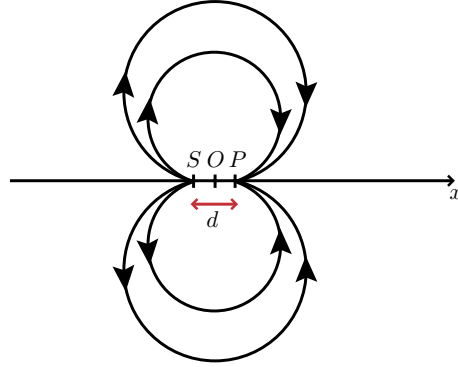


FIGURE 3.5: Schéma d'un ensemble constitué d'une source de fluide S et d'un puits P alignés selon l'axe (Ox) . Leurs débits sont identiques et notés Q . Dans la limite où la séparation d tend vers 0 en maintenant le produit $p = Qd$ constant, ce système constitue un dipôle. Les lignes de courant de l'écoulement créé par ce dipôle sont représentées par les flèches noires.

obstacle cylindrique d'axe perpendiculaire au plan (xOy) et de rayon R perturbe l'écoulement de manière dipolaire.

Considérons que le système est soumis à gradient de pression constant dans la direction (Ox) . L'écoulement obtenu sans obstacle est alors uniforme dans la direction (Ox) . On note la vitesse dans cette direction $v_x = U$. Cette vitesse U correspond à la vitesse moyennée selon la hauteur de la cellule. Le potentiel des vitesses associé à cet écoulement s'écrit alors :

$$\phi_{\text{uniforme}} = Ux \quad (3.21)$$

ou encore, en coordonnées cylindriques :

$$\phi_{\text{uniforme}} = Ur \cos(\theta) \quad (3.22)$$

La présence de l'obstacle perturbe cet écoulement. Pour obtenir la forme de cette perturbation nous pouvons effectuer un développement multipolaire. Ce développement multipolaire de la perturbation doit satisfaire les conditions aux limites du problème, à savoir l'impénétrabilité du fluide à la surface de l'obstacle. Si le développement satisfait aux conditions aux limites, celui-là sera l'unique solution du problème. En effet, l'équation à résoudre est l'équation de Laplace que satisfait le potentiel des vitesses ϕ , $\Delta\phi = 0$, qui est linéaire. Le premier terme non-nul du développement multipolaire est le dipôle. En effet, le monopôle implique une source de fluide, ce qui n'est évidemment pas le cas d'un obstacle. Rajouter seulement un terme dipolaire au potentiel des vitesses est-il compatible avec les conditions aux limites du problème ? Ecrivons donc le potentiel des vitesses comme suit :

$$\phi = \phi_{\text{uniforme}} + \phi_{\text{dipôle}} = Ur \cos(\theta) + \frac{p \cos(\theta)}{2\pi r} \quad (3.23)$$

Le potentiel des vitesses dipolaire écrit ci-dessus correspond au potentiel créé par une source S et un puits P de même débit Q , alignés selon l'axe (Ox) et séparés d'une distance d avec $d \rightarrow 0$ en maintenant le produit Qd constant, voir figure 3.5. Le paramètre p équivaut à Qd et est appelé moment du dipôle. Les composantes du vecteur vitesse s'écrivent alors :

$$v_r = \frac{\partial \phi}{\partial r} = \left(U - \frac{p}{2\pi r^2} \right) \cos(\theta) ; v_\theta = \frac{1}{r} \frac{\partial \phi}{\partial \theta} = - \left(U + \frac{p}{2\pi r^2} \right) \sin(\theta) \quad (3.24)$$

Les conditions aux limites sur le champ de vitesse sont les suivantes :

$$v_x = U \quad \text{loin de l'obstacle} \quad (3.25)$$

$$v_r(r = R, \theta) = 0 \quad (3.26)$$

Cette seconde condition traduit l'impénétrabilité du fluide à la surface de l'obstacle. Le champ de vitesse créé par le dipôle décroît en $1/r^2$, ce qui induit que la première condition est automatiquement vérifiée. La seconde condition doit être vraie pour tout θ , ce qui implique que :

$$p = 2\pi UR^2 \quad (3.27)$$

Il existe donc bien un terme dipolaire satisfaisant aux conditions aux limites du problème. Le développement multipolaire de la perturbation se réduit alors effectivement à un dipôle. Celui-ci est un dipôle de source car le paramètre p obtenu est positif. Les lignes de courants créés par ce dipôle sont représentées sur la figure 3.5. Le potentiel des vitesses de l'écoulement s'écrit donc finalement :

$$\phi = Ur \cos(\theta) \left(1 + \frac{R^2}{r^2} \right) \quad (3.28)$$

3.4 Bibliographie

- [1] Beatus, T., Tlusty, T. & Bar-Ziv, R. Phonons in a one-dimensional microfluidic crystal. *Nature Physics* **2**, 743–748 (2006).
- [2] Guazzelli, E. & Hinch, J. Fluctuations and instability in sedimentation. *Annual Review of Fluid Mechanics* **43**, 97 (2011).
- [3] Ramaswamy, S. Issues in the statistical mechanics of steady sedimentation. *Advances in Physics* **50**, 297 (2001).
- [4] Evans, E. & Sackmann, E. Translational and rotational drag coefficients for a disk moving in a liquid membrane associated with a rigid substrate. *Journal of Fluid Mechanics* **194**, 553 (1988).
- [5] Cui, B. X., Diamant, H., Lin, B. & Rice, S. A. Anomalous hydrodynamic interaction in a quasi-two-dimensional suspension. *Physical Review Letter* **92**, 258301 (2004).
- [6] Blawdziewicz, J. & Wajnryb, E. An analysis of the far-field response to external forcing of a suspension in the Stokes flow in a parallel-wall channel. *Physics of Fluids* **20**, 093303 (2008).
- [7] Di Leonardo, R., Cammarota, E., Bolognesi, G., Schafer, H. & Steinhart, M. Three-dimensional to two-dimensional crossover in the hydrodynamic interactions between micron-scale rods. *Physical Review Letter* **107**, 044501 (2011).
- [8] Hulin, J.-P., Cazabat, A.-M., Guyon, E. & Carmona, F. *Hydrodynamics of Dispersed Media* (Elsevier, 1990).
- [9] Deegan, R. D. *et al.* Capillary flow as the cause of ring stains from dried liquid drops. *Nature* **389**, 827–829 (1997).
- [10] Deegan, R. D. *et al.* Contact line deposits in an evaporating drop. *Physical Review E* **62**, 756–765 (2000).
- [11] Seemann, R., Brinkmann, M., Pfohl, T. & Herminghaus, S. Droplet based microfluidics. *Reports on Progress in Physics* **75**, 016601 (2012).
- [12] Beatus, T., Bar-Ziv, R. H. & Tlusty, T. The physics of 2D microfluidic droplet ensembles. *Physics Reports* **516**, 103–145 (2012).
- [13] Popel, A. S. & Johnson, P. C. Microcirculation and hemorheology. *Annual Review of Fluid Mechanics* **37**, 43 (2005).
- [14] Zhang, H. P., Be’er, A., Florin, E.-L. & Swinney, H. L. Collective motion and density fluctuations in bacterial colonies. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* **107**(31), 13626–30 (2010).
- [15] Zhang, R., Turner, L. & Berg, H. C. The upper surface of an Escherichia coli swarm is stationary. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* **107**(1), 288–90 (2010).
- [16] Beatus, T., Tlusty, T. & Bar-Ziv, R. Burgers Shock Waves and Sound in a 2D Microfluidic Droplets Ensemble. *Physical Review Letters* **103**, 114502 (2009).

- [17] Rouyer, F., Lhuillier, D., Martin, J. & Salin, D. Structure, density, and velocity fluctuations in quasi-two-dimensional non-Brownian suspensions of spheres. *Physics of Fluids* **12**, 958 (2000).
- [18] Champagne, N., Vasseur, R., Montourcy, A. & Bartolo, D. Traffic jams and intermittent flows in microfluidic networks. *Physical Review Letter* **105**, 044502 (2010).
- [19] Thutupalli, S., Seemann, R. & Herminghaus, S. Swarming behavior of simple model squirmers. *New Journal of Physics* **13**, 073021 (2011).
- [20] The supplementary movie of a flowing microfluidic emulsion is available at URL https://blog.espci.fr/raphaeljeanneret/files/2013/10/video_S1.mov.
- [21] Risken, H. *The Fokker-Planck Equation : Methods of Solution and Applications* (Springer Verlag, Berlin, 1996).
- [22] Menzel, A. Collective motion of binary self-propelled particle mixtures. *Physical Review E* **85**, 021912 (2012).
- [23] Palacci, J., Cottin-Bizonne, C., Ybert, C. & Bocquet, L. Osmotic traps for colloids and macromolecules based on logarithmic sensing in salt taxis. *Soft Matter* **8**, 980 (2012).
- [24] Anderson, J. L. Colloid transport by interfacial forces. *Annual Review of Fluid Mechanics* **21**, 61 (1989).

CHAPITRE 4

Expérience hydrodynamique d'écho

Une propriété remarquable, et souvent contre intuitive, des écoulements de fluides visqueux est leur invariance par renversement du temps. Une conséquence importante de cette propriété concerne les processus de mélange, comme parfaitement illustrée par G.I. Taylor au travers d'une expérience modèle en 1966. Il injecte une goutte de colorant dans un fluide visqueux contenu dans une cellule de Couette cylindrique : en imprimant 4 tours vers la droite à l'axe de la cellule, Taylor mélange la goutte au fluide environnant, puis la reforme en tournant l'axe de la cellule de 4 nouvelles rotations vers la gauche, il "démélange" la solution et repositionne la goutte dans sa forme initiale, voir la vidéo de l'expérience [1]. La mesure de la déformation de la goutte est une mesure de type écho commune à de nombreux domaines de la physique (RMN, acoustique, rhéologie,...) et utilisée précisément pour isoler les composantes irréversibles de processus dynamiques. Dans le même contexte hydrodynamique, D.J. Pine et collaborateurs ont revisité en 2005 l'expérience d'écho de Taylor en remplaçant la goutte de colorant par une distribution homogène concentrée de particules non-Browniennes [2]. Ce dispositif qui permet une visualisation directe des trajectoires a mis en évidence une transition dynamique inattendue. Sous application de séquences de déformations oscillantes, et donc réciproques, la réversibilité des écoulements est brisée pour des amplitudes de cisaillement excédant une valeur "critique" γ_c . Précisément, en deçà de γ_c , les particules reviennent à leurs positions initiales après chaque période de l'oscillation, alors qu'au delà les trajectoires stroboscopées sont diffuses.

Ces résultats sont à mettre en parallèle avec le débat fondamental entre Loschmidt et Boltzmann lorsque ce dernier bâtit les bases de la physique statistique. Loschmidt avançait alors que si, à un instant donné, on inverse la vitesse de chacune des particules d'un gaz dans une boîte, le système, caractérisé par

des interactions mécaniques réversibles, devrait revenir à sa position initiale. Ceci invaliderait alors le principe d’une flèche du temps et serait en désaccord avec le second principe de la thermodynamique. Ainsi un système caractérisé par des lois microscopiques réversibles doit voir l’émergence d’une irréversibilité au niveau macroscopique.

Le but de l’expérience d’écho présentée dans ce chapitre est donc de caractériser et de comprendre l’émergence de cette irréversibilité macroscopique dans un système ayant un grand nombre de degrés de liberté ($N_{particules} \gg 1$) et évoluant par le biais d’une dynamique réversible à l’échelle microscopique. La mise en place de cette expérience d’écho est décrite dans le chapitre 2. Les résultats les plus importants à ce jour, identifiant un lien direct entre la structure du système et la réversibilité, sont décrits dans la première section de ce chapitre à travers l’article actuellement en examination pour publication dans *Nature Communications*. J’ai inséré cet article tel quel en modifiant la mise en page afin qu’elle soit cohérente avec le format de ce manuscrit. Dans un second temps, j’ai approfondi l’approche structurelle en détaillant l’ordre orientationnel des émulsions. Finalement, je m’attarde sur les perspectives possibles de cette étude.

4.1 Geometrically-protected reversibility in hydrodynamic Loschmidt-echo experiments

Abstract

We demonstrate an archetypal Loschmidt-echo experiment involving thousands of droplets which interact in a reversible fashion via a viscous fluid. Firstly, we show that, unlike equilibrium systems, periodically driven microfluidic emulsions self-organize and geometrically protect their macroscopic reversibility. Self-organization is not merely dynamical; we show that it has a clear structural signature akin to that found in a mixture of molecular liquids. Secondly, we show that, above a maximal shaking amplitude, structural order and reversibility are lost simultaneously in the form of a first order non-equilibrium phase transition. We account for this discontinuous transition in terms of a memory-loss process. Finally, we suggest potential applications of microfluidic echo as a robust tool to tailor colloidal self-assembly at large scales.

Introduction

The echo protocol consists in studying the evolution of a system after a reversal in its dynamics. Both from a theoretical and an applied perspective echo protocols have attracted much interest in fields as diverse as quantum information [3], medical imaging, high T_c superconductors [4], fluid mechanics [5], granular [6] and soft matter [7, 2, 8, 9]. For instance, in statistical and non-linear physics, the echo dynamics of chaotic systems has been an area of intense fundamental research since the original debate between Loschmidt and Boltzmann

about the emergence of macroscopic irreversibility in systems governed by time-reversible laws at the microscopic level [10]. Conversely, in the condensed matter and mechanics communities, the echo protocols had been predominantly used as effective characterization methods (e.g. neutron and NMR spin echo) until publication of a seminal set of experiments by Pine and coworkers [2, 11]. These experiments consist in shearing periodically a concentrated suspension, in which actual irreversible collisions overcome the reversible hydrodynamic interactions between the particles [11, 12]. Unexpectedly, it was found that when decreasing the driving amplitude the system self-organizes, and displays a bona fide non-equilibrium second order transition yielding a macroscopically reversible state. The authors hence revealed a behavior somehow opposite to Loschmidt’s gedanken experiment, suggested 137 years ago [10, 3] : macroscopic reversibility emerges from an underlying time-irreversible dynamics. A surge of theoretical studies then showed that the irreversible-to-reversible transition belongs to the universality class of directed percolation [11, 13, 14], thereby identifying reversibility as the trapping in an absorbing state. In addition subsequent experiments showed that this scenario is relevant to a broader class of classical many-body systems including driven vortices in type-II superconductors [4] and dense granular media [6]. Notably, until now, no structural change has been observed at the irreversible-to-reversible transition, and this phenomenon has been referred to as a ”random self-organization”.

Here, we introduce an archetypal Loschmidt echo experiment. We take advantage of a microfluidic setup in which more than $N \sim 2 \times 10^5$ interacting droplets evolve according to a *time-reversible dynamics at the microscopic level*. This setup makes it possible to probe the emergence of *macroscopic irreversibility* from the single-particle to the entire system level as the droplets are driven in a periodic fashion. We first provide a quantitative definition of the system reversibility, which does not depend on the resolution of the measurement apparatus. We then demonstrate that macroscopic irreversibility arises only above a minimal driving amplitude, in the form of a first order nonequilibrium phase transition. Conversely, in the small driving regime we demonstrate that structural order emerges in the emulsion and geometrically-protects reversible macrostates. This spatial ordering corresponds to the formation of two coexisting liquid-like phases. The simultaneous loss of reversibility and translational order at higher drivings is then explained by investigating how this many-body system forgets about its trajectory upon periodic driving.

We close our article by discussing practical applications of these fundamental results, with a special emphasis on large-scale colloidal self-assembly.

Results

A microfluidic echo experiment

The experimental setup is thoroughly described in the Methods section and in the chapter 2. The system is composed of spherical oil droplets dispersed in an aqueous solution, Fig. 4.1a. This emulsion is confined in a 5 cm-long, and

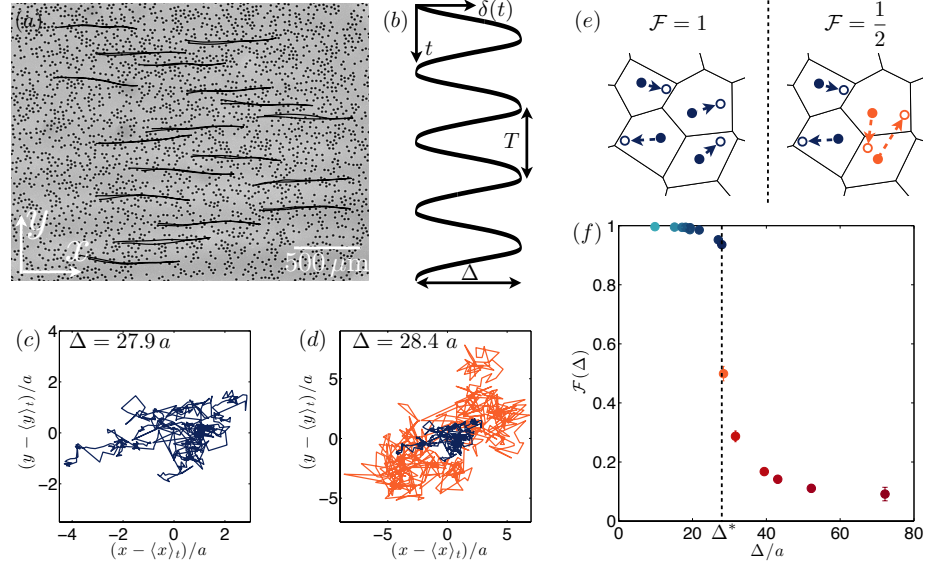


FIGURE 4.1: (a) Typical snapshot of an experiment. 18 single-cycle trajectories are superimposed (black lines). (b) Variations of the instantaneous mean displacement $\delta(t) \equiv \langle x_i(t) - x_i(t=0) \rangle_i$ plotted versus time over 4 cycles. $\delta(t)$ oscillates at a period T with an amplitude Δ . Here, $\Delta = 27.9a$, and $T = 10$ s. Average performed over ~ 3000 trajectories. (c) Stroboscopic trajectory followed by a single particle over 500 cycles (driving amplitude, $\Delta_1 = 27.9a$). (d) Orange curve : Stroboscopic trajectory followed by a single particle over 500 cycles (driving amplitude, $\Delta_2 = 28.4a$). Blue curve : same trajectory as in (c). (e) Schematic picture to guide the definition of the fidelity function \mathcal{F} . The positions of four droplets at the beginning of the cycle (filled circles) define the Voronoï cells. In the left panel, all four droplets return to their initial Voronoï cells at the end of the cycle (empty circles), which corresponds to $\mathcal{F} = 1$. In the right panel, only two droplets return to their initial cells (blue circles). The two others escape after a cycle (red circles). This case corresponds to $\mathcal{F} = 0.5$. (f) Evolution of the fidelity \mathcal{F} with the driving amplitude Δ . The color of the markers codes for Δ , same color-code throughout the entire document. A threshold amplitude Δ^* is clearly defined : below Δ^* , \mathcal{F} remains close to 1, while above the fidelity decays sharply.

5 mm-wide microchannel shown in Figure 2.13. The droplets are highly monodisperse, their diameter $a = 25.5 \pm 0.5 \mu\text{m}$ is comparable to the channel height $h = 27 \pm 0.1 \mu\text{m}$. In all that follows the area fraction is set to $\phi = 0.36 \pm 0.02$. We use a high-precision syringe pump to drive the oil droplets in a periodic fashion, see Fig. 4.1a and Supplementary Movie 1 [15]. The instantaneous water flow rate is sinusoidal : $Q(t) = Q \sin(2\pi t/T)$, where T is the actuation period. The experiment consists in tracking the instantaneous position $(x_i(t), y_i(t))$ of ~ 3000 droplets at the center of the channel over hundreds of oscillation periods. Already over a single period, the hydrodynamic interactions between the droplets alter their motion. The trajectories fluctuate around the straight lines parallel to the x -axis that passive tracers would follow, Fig. 4.1a. However, the center of mass of the particles displays a well-defined periodic motion along the x -direction, with a residual drift one order of magnitude smaller than the smallest driving amplitude. Defining the instantaneous mean particle displacement $\delta(t) \equiv \langle x_i(t) - x_i(t=0) \rangle_i$, we find that $\delta(t)$ oscillates in a sinusoidal manner at a period T with an amplitude Δ that scales as QT , see Fig. 4.1b. Within our experimental conditions, $\delta(t)$ deviates by less than 5 % from an ideal sinusoidal trajectory.

Δ is the sole control parameter of our echo experiments : starting from the same initial conditions, we investigate the global reversibility of the droplet trajectories as Δ is increased. We stress that we henceforth focus on the *long-time dynamics* of the periodically-driven emulsions, where all the measured quantities have reached their stationary value.

Fidelity decay in shaken emulsions

Supplementary Movies 2 [16] and 3 [17] show the dynamics of the droplets for two different, but very close, driving amplitudes $\Delta_1 = 27.9a$, and $\Delta_2 = 28.4a$ respectively. These two movies are strobed at a period T . In Supplementary Movie 2 [16], the particles merely fluctuate around their initial position. It is therefore possible to keep track of each particle by inspecting their strobed pictures only. Increasing Δ by 2% only yields a markedly different dynamics. In Supplementary Movie 3 [17], the strobed trajectories are composed of apparently uncorrelated large amplitude jumps, which prohibit tracking the individual-droplet positions. This significant qualitative change in the strobed trajectories suggests that the system undergoes a sharp transition from a reversible to an irreversible state. Let us now provide a quantitative description for this intuitive picture. The strobed trajectory of a single droplet is shown in Fig. 4.1c (resp. d) for Δ_1 (resp. Δ_2). Irrespective of the driving amplitude, they look like random walks. Strictly speaking none of the two dynamics is reversible, as even for the smaller amplitude, the strobed trajectory does not amount to a single point. Therefore, the distinction between the two dynamics is intrinsically related to the spatial resolution at which we observe them, see Fig. 4.1c and 4.1d.

In order to minimize the impact of spatial resolution, we quantify the amount of reversibility without referring explicitly to the magnitude of the particle displacements. Here, a system is defined to be reversible if the particle positions

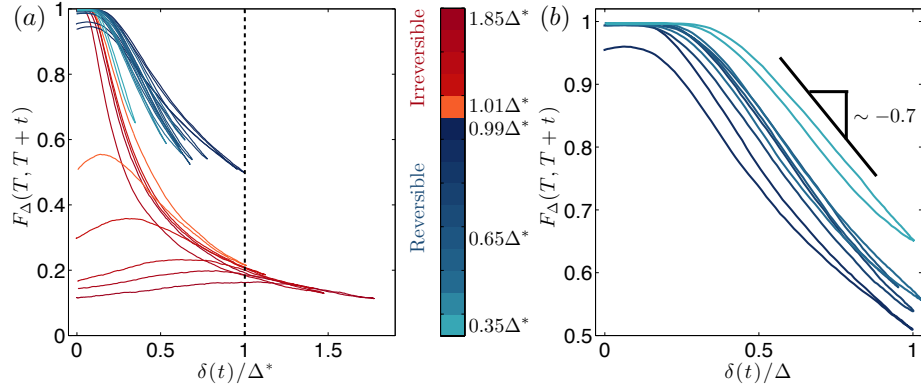


FIGURE 4.2: (a) Instantaneous fidelity function $F_{\Delta}(T, T+t)$ plotted as a function of the rescaled instantaneous displacement $\delta(t)/\Delta^*$ for all the driving amplitudes. Again, the color codes for the driving amplitude Δ . (b) Instantaneous fidelity function $F_{\Delta}(T, T+t)$ plotted as a function of the rescaled instantaneous displacement $\delta(t)/\Delta$ in the reversible regime $\Delta < \Delta^*$. For sake of clarity, only half of the experiments below the transition is displayed. The fidelity decays asymptotically as $\sim -0.7\delta(t)/\Delta$, which demonstrates that the emulsion self-organizes differently for each driving amplitude.

can be inferred solely from the inspection of two subsequent strobed pictures. The weakest constraint on the trajectories to solve this inference problem in a unambiguous fashion is that the particles at $t+T$ do not escape the Voronoï cell they occupied at t . Any algorithm based on distance minimization would indeed fail in reconstructing deterministically the droplets' trajectory if this topological condition were not met. As exemplified in Fig. 4.1e, we introduce the fidelity function $\mathcal{F}(\Delta)$ which is the time averaged fraction of droplets that occupy the same Voronoï cell at the beginning and at the end of a period. A perfectly reversible dynamics corresponds to $\mathcal{F} = 1$, whereas a fully irreversible system is characterized by $\mathcal{F} = 0$. This definition reflects our initial intuitive criteria. We recall here that \mathcal{F} is a stationary quantity reached after a number of oscillations. We may note that, not surprisingly, \mathcal{F} is an overlap function between two conformations of the system akin to that defined in [18, 19] to quantify dynamical heterogeneities in amorphous granular ensembles.

Irreversibility as a breakdown of self-organization

The variations of $\mathcal{F}(\Delta)$ are plotted in Fig. 4.1f. \mathcal{F} remains close to 1 at small amplitudes. Above a well-identified threshold : $\Delta^*/a = 28.1 \pm 0.3$, the fidelity decays sharply toward very small values and plateaus as Δ is further increased. Increasing Δ by 2% around Δ^* , the number of droplets remaining in their Voronoï cell drops from 94% to 50%. The extreme sharpness of the fidelity

loss is a strong hint of a genuine non-equilibrium phase transition.

Two comments are in order. Firstly, the strong fidelity decay is all the more surprising insofar as the droplets interact almost exclusively via reciprocal flows. The capillary number, Ca , that quantifies how much the droplets are deformed by the flow gradients is indeed kept below $Ca = 10^{-4}$ in all our experiments. Accordingly, we observe no change in the drop shape in the course of a cycle. The Reynolds number, Re , is also much smaller than one both in the oil and in the water phases : $Re < 10^{-2}$. In addition, during half a cycle, the fluid momentum diffuses over a distance that scales as $\ell \sim \sqrt{\eta T / \rho}$, where η is the water viscosity and ρ its density. Within our experimental conditions $\ell \sim 3$ mm, which is comparable to the channel width. Consequently, the fluid flows in the two phases are very well accounted for by the Stokes equation which is invariant under time reparametrization [20]. In addition, we stress that the droplets only experience lubricated contacts with the other droplets and the walls. Actual contacts would result in coalescence or wall-wetting events. None of these events were observed in the entire ensembles of $\sim 2 \times 10^5$ droplets. Altogether these four observations imply that the droplets are chiefly coupled by time-reversible hydrodynamic interactions at all inter-particle distances. We can thus already conclude that any macroscopic fidelity loss must arise from the collective amplification of minute irreversible processes that cannot be probed at the single/two particle levels.

A second important comment is that the uniform flow field in the aqueous phase does not provide any intrinsic length scale to set the value of Δ^* . This situation contrasts with the previous mechanical echo experiments, which are all based on a macroscopic shear deformation [2, 6, 9]. The non-uniformity of shear flows yields a natural criterion for the "critical" strain amplitude, γ , at which particle collisions occur. The fidelity decay is then expected to occur when the relative displacement γa between two particles moving along two parallel flow lines separated by a equals the typical inter-particle distance $a/\sqrt{\phi}$ (in $2D$). In our Hele-Shaw geometry, the mean flow is a plug flow that can merely advect the droplet ensemble in a uniform fashion. This observation further supports the hypothesis that the hydrodynamic interactions are responsible for the transition toward a macroscopically (ir)reversible state in our experiments.

To gain a deeper physical insight in the collective nature of this discontinuous phase transition, we quantify how much the system differs from its initial conformation in the course of a cycle. We introduce an "instantaneous" fidelity function $F_\Delta(T, T+t)$ where $t \in [0, T]$, which is defined as the fraction of droplets that occupy the same Voronoï cell at time t as at the beginning of a cycle. (The positions of the droplets are measured in the frame of the center of mass of the N droplets to discard trivial advection.) We show the variations of $F_\Delta(T, T+t)$ averaged over 15 cycles as a function of the instantaneous mean displacement $\delta(t)$ in Fig. 4.2a where the color codes for the driving amplitude.

For $\Delta < \Delta^*$ (blue curves), and $\delta(t)/\Delta^* \ll 1$, almost no particle escapes its initial Voronoï cell, and $F_\Delta(T, T+t)$ hardly deviates from 1. For higher displacements, $F_\Delta(T, T+t)$ decays linearly with $\delta(t)$ until $t = T/2$. Then starts the echo process, the direction of the flow is reversed and the system should retrace its steps back. As expected, $F_\Delta(T, T+t)$ increases, linearly again, as

$\delta(t)$ goes back to zero. However, in agreement with Fig. 4.1f, the dynamics is not fully reversible and the final value $F_{\Delta}(T, 2T) = \mathcal{F}(\Delta)$ is slightly smaller than 1, see Fig. 4.2b. Looking now at the variations of the instantaneous fidelity with $\delta(t)/\Delta$ in Fig. 4.2b, we readily note that the decay rate of the fidelity depends on the driving amplitude, and decreases as Δ^{-1} . From this observation we infer a pivotal result : the conformation of the droplets, at the beginning of a cycle, is a function of the overall driving amplitude. In other words the emulsion self-organizes when periodically driven.

We now consider the case of the higher amplitudes. For $\Delta > \Delta^*$ (red curves in Fig. 4.2a), the variations of $F_{\Delta}(T, T+t)$ are markedly different. During the first half of the cycle, $F_{\Delta}(T, T+t)$ hardly depends on the driving amplitude : the fidelity decays rapidly and almost all the droplets rearrange. At the onset of flow reversal some of the rearrangements are suppressed by the reversible dynamics and the fidelity increases. However, approaching the end of the cycle the droplets no longer manage to retrace their steps back anymore, and the fidelity decays again to reach a small $\mathcal{F}(\Delta)$ value. Importantly, in this limit, the system self-organizes into a state that does *not* depend on the driving amplitude anymore.

Self-organization has been reported in periodically sheared suspensions first by Cort   *et al* [11]. Reversible states were shown to correspond to absorbing states where the particles do not interact at all in the course of the cycles. We have just described an opposite scenario. Even for $\Delta < \Delta^*$ where the dynamics is reversible, the particles strongly interact. A macroscopic fraction of the droplets rearrange even for the smallest driving amplitudes, Fig. 4.2a. The instantaneous position of the individual droplets is not trapped inside an absorbing state. The phenomenology that we observe is actually similar to that found in soft solids close to the onset of plastic flows [7, 9]. The existence of reversible plastic events is a generic feature of dry grains, concentrated emulsions and suspensions interacting elastically when driven periodically below their yield stress.

We have shown above that : (i) the loss of fidelity results from a non-equilibrium phase transition, (ii) this collective phenomenon is associated to the self-organization of the droplets below the reversibility threshold. We now provide an explicit connection between these two findings and shed light on the nature of the self-organization process.

Geometrically-protected reversible states

Looking at two instantaneous snapshots of the droplets below and above Δ^* (Fig. 4.3a, and 4.3b respectively), one clearly notices that the spatial structure of the emulsion strongly depends on the driving amplitude. The droplets fill the channel in a more homogeneous fashion when undergoing reversible trajectories. To go beyond this qualitative observation, we have plotted the variations of the (strobed) radial distribution function $g(r)$ at the beginning of each cycle, for different driving amplitudes in Fig. 4.3c. We also show the radial distribution corresponding to the initial conditions common to all the experiments, the highest curve in Fig. 4.3c (same curve as that plotted Fig. 3.3). In the initial state,

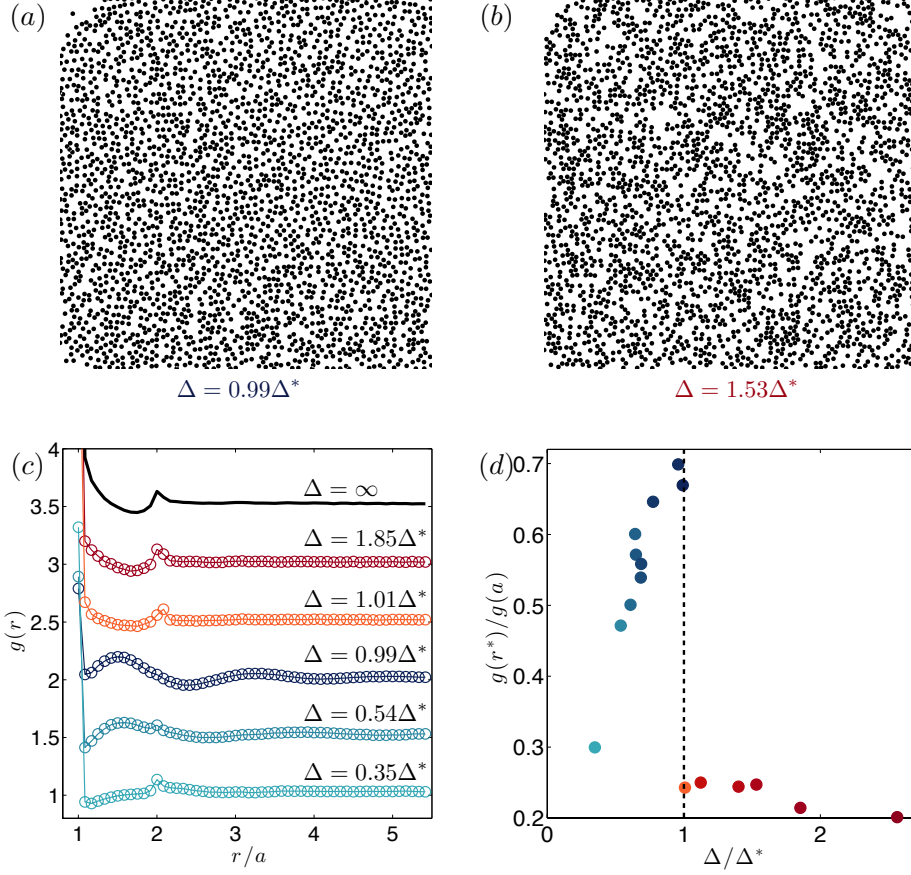


FIGURE 4.3: (a) Snapshot of an emulsion shaken at $\Delta = 0.99 \Delta^*$ in the reversible regime, $\phi = 0.37$. (b) Snapshot of an emulsion shaken at $\Delta = 1.53 \Delta^*$ in the irreversible regime, $\phi = 0.36$. Note that the area fraction in (a) and (b) are quasi identical. (c) Strobed radial distribution function $g(r)$ for different driving amplitudes Δ . For sake of clarity the curves are shifted vertically by a 0.5 constant value. A sharp change in the structure occurs at Δ^* . Above Δ^* the structure of the emulsion does not depend on Δ any longer and remains identical to the one found in the initial state common to all the experiments (black curve). (d) Ratio of the fraction of droplets separated by a distance $r^* = 1.5 a$, to the fraction of droplets in close contact, $g(r^*)/g(a)$, plotted versus Δ/Δ^* . A clear discontinuity occurs at $\Delta = \Delta^*$ revealing a first order structural transition.

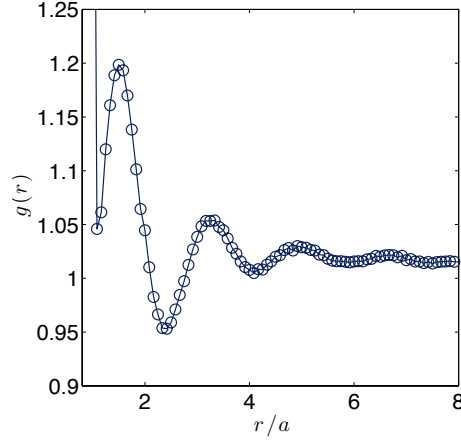


FIGURE 4.4: Strobbed radial distribution function $g(r)$ for $\Delta = 0.99\Delta^*$. The correlation goes up to 7 particle diameters close to the transition.

$g(r)$ is characterized by a strongly peaked value at $r = a$, which is characteristic of the steric repulsion between hard discs. Again, the droplets are non deformed by the flow. A second narrow peak at $r = 2a$ suggests that the droplets experience short range attractive interactions. The position of the droplets loses any correlation above $r = 2a$. This structure is analogous to that found in confined fluidized beds made of rigid discs [21], which demonstrates that the effective attractive interactions between the droplets do not result from any physico-chemical adhesion force, but solely stem from hydrodynamic interactions.

In the small amplitude regime, $\Delta \ll \Delta^*$, the structure of the suspension is hardly modified. However, as Δ is further increased, the static structure of the emulsion self-organizes : the sharp peaks at $r = a$ and $r = 2a$ decrease while another structure emerges. The radial distribution displays an additional set of marked oscillations revealing a structure analogous to a soft-sphere liquids at equilibrium, with a first wider peak located at $r^* \sim 1.5a$ regardless of the driving amplitude. As Δ approaches Δ^* , the spatial correlation of this liquid-like structure increases up to distances as large as 7 particle diameters, see Figure 4.4. Conversely, above Δ^* self-organization does not operate anymore, and the emulsion weakly deviates from its initial conformation. The abrupt drop of the fidelity at Δ^* coincides with a discontinuous structural change, Fig. 4.3d. This observation, together with the superposition of two different marked structures below Δ^* confirm a first order phase-transition scenario, and suggests that the system undergoes a dynamical phase separation. We now provide a clear demonstration of this hypothesis.

In Figs. 4.5a, b and c we show instantaneous conformations of the local fidelity field (see Supplementary Movies 4 [22], 5 [23] and 6 [24] for the corresponding strobbed movies). Each Voronoï cell, defined at the beginning of the

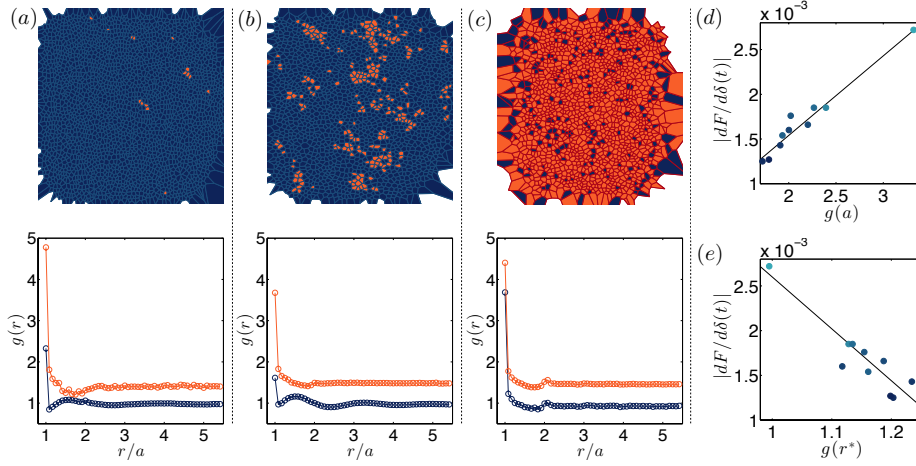


FIGURE 4.5: (a) Top : Snapshot of the instantaneous fidelity field for $\Delta = 0.54 \Delta^*$. Each Voronoi cell is colored in blue when associated with a particle that retraces its steps back in the very same cell at the end of the cycle. The cell is colored in orange otherwise. Bottom : Strobed radial distribution function $g(r)$ computed in the reversible (resp. irreversible) cells. Same color code. (b) and (c) Same plots as in (a) for $\Delta = 0.99 \Delta^*$ and $\Delta = 1.53 \Delta^*$ respectively. The irreversible populations display a structure akin to a hard-attractive-discs fluid for all the driving amplitudes. Oppositely, the structure in the reversible regions depends on Δ . Below Δ^* , the droplets self-organize to form clusters having a structure similar to a hard-attractive-discs liquid living in a sea of a soft-repulsive-discs liquid. For $\Delta \lesssim \Delta^*$, the correlation length of the translational order is maximal. The typical distance between neighboring particles is maximal as well. Above Δ^* , the instantaneous structure is homogeneous. Only a minute fraction of the droplets return stochastically in their initial Voronoi cell. (d) Slope of the linear part of the instantaneous fidelity decay $|dF_\Delta(T, T+t)/d\delta(t)|$, plotted as a function of the fraction of particles in close contact $g(a)$ (see Fig. 4.2b). (e) Slope of the linear part of the instantaneous fidelity decay $|dF_\Delta(T, T+t)/d\delta(t)|$, plotted as a function of the fraction of particles at a distance r^* , $g(r^*)$. Same color code as in all the previous plots.

cycle, is colored in blue when associated with a particle that retraces its step back to the very same cell at the end of the cycle. The cell is colored in orange otherwise. At small amplitudes, $\Delta \ll \Delta^*$, clusters composed of very few irreversible events are dilute in a sea of reversible ones, see Fig. 4.5a. As Δ approaches Δ^* , Fig. 4.5b, both the typical size and the number of those irreversible transient clusters increase, thereby inducing the fidelity decay observed in Fig. 4.1f. The relation between the fidelity loss and the structural properties of the emulsion can now be clearly established. Using these fidelity maps, we plot in Figs. 4.5a and 4.5b the radial distribution function of the particles living in the reversible (resp. irreversible) region only. As the driving increases, the spatial structure in the irreversible regions remains unchanged. This structure corresponds to a hard-disc liquid with attractive interactions as in the initial (homogeneous) state of the experiment. In contrast, in the reversible regions the droplets self-organize to form a soft-repulsive-disc structure. At the onset of the fidelity loss, the extent of translational order is maximal, thereby maximizing the typical distance between the neighboring particles. The instantaneous conformation of the suspension is biphasic : two liquids having different structures coexist in two separated phases. This picture no longer holds above Δ^* , Fig. 4.5c. All the particles then contribute in the same fashion to the average structure. The emulsion retains its initial spatial ordering, and the strong agitation impedes phase separation. Most of the particles undergo irreversible trajectories, and only a minute fraction of the Voronoï cells are associated with reciprocal motion.

In order to further emphasize the relation between the dynamical and the structural properties of the emulsion, we now show that the number of particles that escape their initial Voronoï cell in the course of a cycle is set by the typical distance between the neighboring droplets. To do so, we plot the decay of the instantaneous fidelity per displacement unit : $|dF_\Delta(T, T+t)/d\delta(t)|$ (slope of the straight lines in Fig. 4.2a) as a function of $g(a)$ and $g(r^*)$, see Figs. 4.5d and 4.5e. When self-organization occurs, $\Delta < \Delta^*$, the fidelity-decay rate increases linearly with $g(a)$ which is the fraction of droplets in close contact. In contrast, this decay rate decreases with $g(r^*)$, viz. as the fraction of droplets separated by a finite distance $r^* \sim 1.5a$ increases. In other words, pushing the droplets apart the escape rate from the initial Voronoï cells is restrained : macroscopic reversibility is geometrically protected by a structural self-organization.

Irreversibility and memory loss

We have hitherto investigated the dynamics of the emulsion in real space from a condensed matter perspective. To gain more physical insight on the origin of reversibility loss upon periodic driving, we now sketch the trajectory of the system in its $2N$ -dimensional phase space, black line in Fig. 4.6a. If the particles were to interact uniquely via (time-reversible) hydrodynamic interactions, this trajectory would be reciprocal. However, in an experiment, or in a numerical simulation, any minute non-time reversible perturbation along the trajectory is expected to be amplified due to the chaotic nature of this many-body system [5, 2, 25]. As a result, the phase-space trajectory should separate

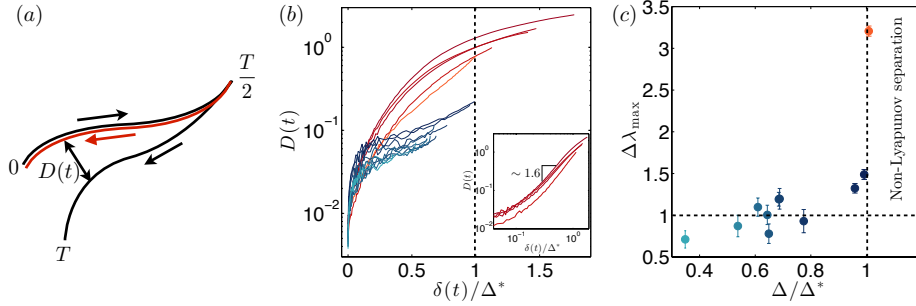


FIGURE 4.6: (a) Sketch of the trajectory of the system in its $2N$ -dimensional phase space upon periodic driving (black lines). These two paths differ due to the chaotic amplification of any minute non-time reversible perturbation. Reversing the arrow of time along the first half of the cycle (red curve), these two trajectories are two different realizations of the system dynamics, for initial condition taken at $t = T/2$. (b) Semi-log plot of $D(t)$ as a function of $\delta(t)/\Delta^*$ for all the driving amplitudes. Same color code as in the previous figures. Inset: Log-Log plot. Above Δ^* , the separation is no longer exponential but algebraic. (c) Plot of $\Delta \lambda_{\max}$ as a function of Δ/Δ^* revealing memory-loss at the onset of irreversibility.

into two different back and forth paths. Exploiting the invariance upon time reparametrization of the hydrodynamic interaction we can reverse the arrow of time along the first part of the cycle (red curve in Fig. 4.6a). By doing so, the two half-trajectories are analogous to two different realizations of the system dynamics for initial conditions taken at $t = T/2$. The asymptotic separation between these two perturbed trajectories after a time t is measured by computing the metric distance in phase space between the conformations of the particles at times $T/2 - t$ and $T/2 + t$. We denote this distance by $D(t)$. In Fig. 4.6b $D(t)$ is plotted as a function of the instantaneous mean displacement $\delta(t)$ for all driving amplitudes Δ . For $\Delta < \Delta^*$, $D(t)$ displays a clear exponential increase, which allows for measuring the largest Lyapunov exponent of the underlying chaotic dynamics. Above Δ^* , the Lyapunov picture breakdown, and the separation between the trajectories increases algebraically, see Fig. 4.6b inset.

Following [26], we expect reversibility to be lost when the chaotic amplification of the microscopic fluctuations causes the system to forget about its initial state in a time smaller than $T/2$, i.e. over a mean displacement smaller than Δ . In more quantitative terms, we expect the fidelity to decay for $\lambda_{\max} \Delta \sim 1$, where the largest Lyapunov exponent λ_{\max} is defined as $D(t) \sim \exp[\lambda_{\max} \delta(t)]$ asymptotically. This hypothesis is confirmed by plotting the product $\lambda_{\max} \Delta$ as a function of Δ/Δ^* in Fig. 4.6c. Below the onset of fidelity decay, the structural self-organization induces variations of λ_{\max} that almost exactly balance the increase in the drive amplitude: $\lambda_{\max} \Delta \sim 1$. Conversely, as Δ exceeds Δ^* , the

path memory is lost, $\lambda_{\max}\Delta > 1$ and the fidelity decays accordingly, Fig. 4.6c.

As a last physical comment, we note that the scaling $\lambda_{\max} \sim 1/\Delta$ is the signature of the convergence toward an absorbing dynamics. Repeating echo protocols, the system evolves toward a phase-space region where $\lambda_{\max}\Delta \sim 1$ and where the trajectories are fully reversible ($\mathcal{F} \sim 1$). Hence the strobed dynamics is frozen, and the system cannot escape this absorbing region. Note however, that these absorbing states refer uniquely to the strobed dynamics, as opposed to the scenario put forward in [11, 14] where the dynamics is frozen along the entire trajectories as the particles self-organize so that they no longer interact. Again this situation is very different from that reported here. We can therefore conjecture that the transition toward irreversibility occurs when all the regions of phase space where λ_{\max} is small enough are either out of reach starting from a strongly shaken state, or do not exist. The latter scenario is consistent with the long-range nature of the hydrodynamic interactions ($\sim 1/r^2$ decay in 2D [27]) which strongly couples the entire population of particles regardless of their conformation.

Discussion

Taking advantage of a quantitative microfluidic experiment, we have demonstrated that periodic shaking results in the emergence of structural order in an ensemble of particles interacting in a time-reversible fashion. Unlike equilibrium systems, this geometric self-organization protects the macroscopic reversibility of the system and realizes a (nonequilibrium) Loschmidt-echo experiment. Even though our primary motivation was to gain a deeper insight into the collective dynamics of periodically driven systems, we anticipate this study to be of practical relevance. Hydrodynamic interactions in fine-tuned flows have recently been shown to be a potential means to program directed colloidal assembly [28]. Here we have demonstrated that even in the simplest possible flow field (a plug flow), hydrodynamic interactions can be put to work to induce spatial ordering in an emulsion. Over the last five years, much effort has been devoted to magnetizing synthesizing non-spherical colloids in the 1-100 microns range, see e.g. [29, 30]. Given our observations, using simple AC hydrodynamic actuation could be a powerful tool to trigger and tailor their self-assembly over massive scales, which until now has remained a major practical issue. A collective effect to engineer self-assembled material is indeed expected to depend only weakly on the variations in particle shape and/or physical properties at the single particle level, thereby making this approach robust and therefore well suited to large-scale production.

Methods

Microfluidics

The microfluidic device is a double etched fused silica/quartz chip (Micronit Microfluidics) sketched in Figure 2.13. It consists of : (i) a conventional flow-

focusing junction used to form monodisperse droplets, (ii) a dilution module made of an additional cross junction, and (iii) two $0.5\text{ cm} \times 5\text{ cm}$ channels. One of the two wide channels is used to transfer the polydisperse droplets produced in the transient regime of the drop emitter. The other one is used to perform the experimental observations, see e.g. Fig. 4.1a, and Supplementary Movie 1 [15]. The height of the flow-focusing and of the dilution modules is $11\text{ }\mu\text{m}$ while the two large channels are $27\text{ }\mu\text{m}$ high. The fluids are injected using three syringe pumps (Cetoni, Nemesys) connected to the three inlets of the device (inlets (a), (b) and (c) in Figure 2.13). Hexadecane is injected through (a) and the continuous phase (0.1 wt% SDS (Sigma), 0.2 wt% fluorescein (Sigma) in deionized water) is injected both through inlets (b) and (c). The channel surfaces were cleaned in a UV/Ozone cleaner through the quartz surface prior to the experiments. As a result, both the glass and the quartz surfaces are highly hydrophilic, thereby preventing partial wetting of the walls by the dispersed phase).

The area fraction $\Phi = 0.36$ is obtained by setting the flow rates as $Q_{(a)} = 0.040\text{ }\mu\text{L.s}^{-1}$, $Q_{(b)} = 0.140\text{ }\mu\text{L.s}^{-1}$ and $Q_{(c)} = 3\text{ }\mu\text{L.min}^{-1}$. The emulsion is periodically driven by imposing an oscillatory flow rate at the outlet (e). To impose the various values of Δ , the magnitude, and period of the sinusoidal oscillations are set to values comprised between $0.02 < Q < 0.039\text{ }\mu\text{L.s}^{-1}$ and $10 < T < 30\text{ s}$ respectively. As expected, the variations of Δ are linear in Q and T .

Prior to any experiment the system is prepared by imposing a high amplitude sinusoidal oscillation ($Q = 0.1\text{ }\mu\text{L.s}^{-1}$) during several cycles. This protocol is chosen to set reproducible initial conditions. In order to make sure that the system is in a steady state, the image acquisition is performed after 1000 cycles at the desired flow rate and period, and we systematically check that all the measured quantities are statistically stationary. The droplet positions are recorded over 150 ($\Delta > \Delta^*$) or 700 cycles ($\Delta < \Delta^*$).

Imaging and particle tracking

The device is mounted on a Nikon AZ100 upright microscope. A Basler Aviator av2300-25gm (4 Megapixel, 8bit) camera is used to record the movement of the droplets in a field of view of $2.70\text{ mm} \times 2.03\text{ mm}$ at the center of the main channel. The frame rate is set at 24 Hz. Image acquisition is performed using a custom direct-to-disk Labview code. The particles are detected to a one-pixel accuracy. The particle velocities are then computed using the Matlab version of the tracking software developed by Grier, Crocker and Weeks [31].

4.2 Perspectives

4.2.1 Pistes de réflexion

La structure de l'émulsion évolue selon l'amplitude Δ de l'écoulement sinusoïdal imposé. En effet, en deçà de la transition observée l'émulsion présente un

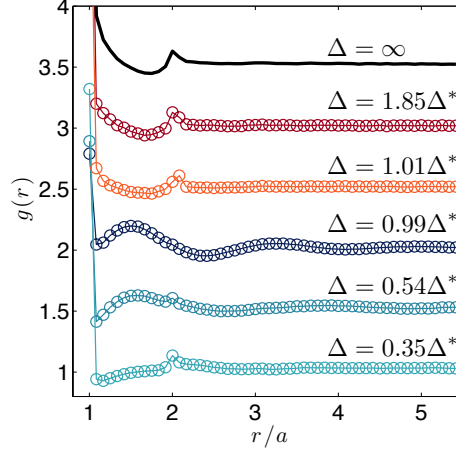


FIGURE 4.7: Fonction de corrélation de paire $g(r)$ pour différentes amplitudes Δ . A la transition, la structure de l'émulsion change drastiquement. Au dessus de la transition, ainsi que pour les très faibles amplitudes, la structure obtenue est celle d'un gaz de sphères dures présentant une légère attraction. Lorsque l'amplitude tend vers Δ^* par le bas, une structure de type liquide de sphères molles apparaît.

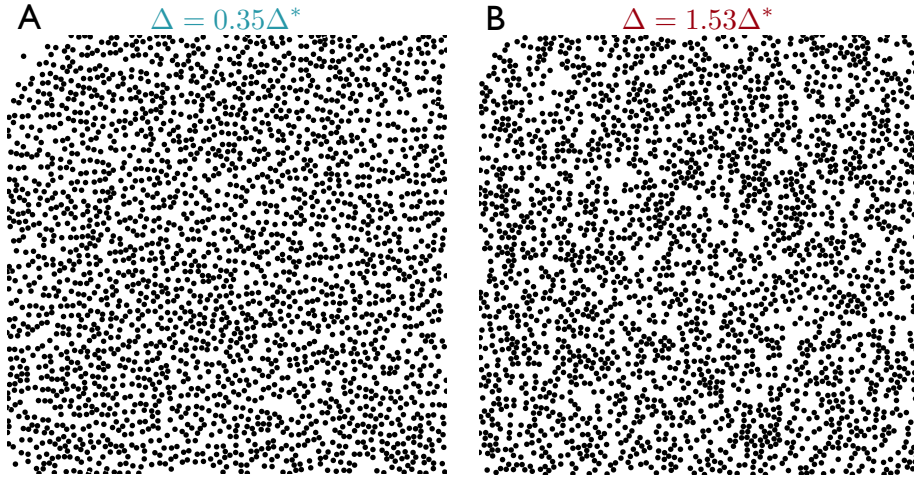


FIGURE 4.8: Instantanés de l'émulsion au début d'un cycle pour deux valeurs de l'amplitude : A. $\Delta = 0.35\Delta^*$ et B. $\Delta = 1.53\Delta^*$. A faible amplitude des structures en lignes apparaissent clairement.

ordre translationnel accru par l'augmentation de l'amplitude Δ , voir figure 4.7. Les gouttes ont tendance à s'écarter les unes des autres réduisant les interactions infinitésimales non-réversibles présentes dans le système et protégeant ainsi la réversibilité macroscopique. Nous allons voir dans cette partie que la structure angulaire de l'émulsion évolue également avec l'amplitude, bien que la signature de cette évolution soit moins claire.

La structure obtenue à travers la fonction de corrélation de paire $g(r)$ est assez similaire pour les très faibles amplitudes et celles au dessus de la transition, voir figure 4.7. En effet, la fonction de corrélation $g(r)$ pour la plus faible amplitude $\Delta = 0.35\Delta^*$ présente un large pic en $r = a$ ainsi qu'un second pic en $r = 2a$. La légère différence réside dans l'anti-corrélation entre ces deux valeurs qui est moins importante pour cette faible amplitude. Ainsi l'évolution de $g(r)$ avec l'amplitude suggère que lorsque $\Delta \rightarrow 0$ il n'y a plus d'organisation structurale de l'émulsion. Pourtant lorsque l'on observe deux instantanés de l'émulsion pour $\Delta = 0.35\Delta^*$ et $\Delta = 1.53\Delta^*$, une différence criante apparaît, voir figure 4.8A et 4.8B respectivement. Clairement, des structures en ligne apparaissent au sein de l'émulsion pour la plus faible amplitude, alors que la structure semble être isotrope au dessus de la transition.

Afin de rendre compte quantitativement de ces observations, je mesure les quantités Ψ_2 , Ψ_4 et Ψ_6 appelées paramètres d'ordre orientationnel. Ces grandeurs sondent au niveau local l'arrangement des gouttes entre elles. Pour chacune des particules j de l'émulsion, à un instant t , on définit ces quantités de la façon suivante :

$$\psi_2^{(j)}(t) = \frac{1}{N_j} \sum_{k=1}^{N_j} e^{2i\theta_{jk}(t)} \quad (4.1)$$

$$\psi_4^{(j)}(t) = \frac{1}{N_j} \sum_{k=1}^{N_j} e^{4i\theta_{jk}(t)} \quad (4.2)$$

$$\psi_6^{(j)}(t) = \frac{1}{N_j} \sum_{k=1}^{N_j} e^{6i\theta_{jk}(t)} \quad (4.3)$$

où N_j est le nombre de particules plus proches voisines de la goutte j définies par la décomposition en cellule de Voronoï. θ_{jk} est l'angle entre le vecteur allant de la particule j vers la particule k et l'axe (Ox) . Ces quantités permettent de sonder la structure locale autour de la particule considérée : les arrangements en ligne pour $\psi_2^{(j)}$, en carré pour $\psi_4^{(j)}$ et en hexagone pour $\psi_6^{(j)}$. Les quantités tracées sur la figure 4.9 correspondent au module de ces grandeurs moyennées sur le temps stroboscopé et sur les particules :

$$\Psi_n = \frac{1}{N_c N_p} \sum_{p=1}^{N_c} \sum_{j=1}^{N_p} \psi_n^{(j)}(pT) \quad (4.4)$$

avec N_c le nombre de cycle de l'expérience et N_p le nombre de particules. Les valeurs obtenues sont très faibles, mais il existe clairement une évolution avec

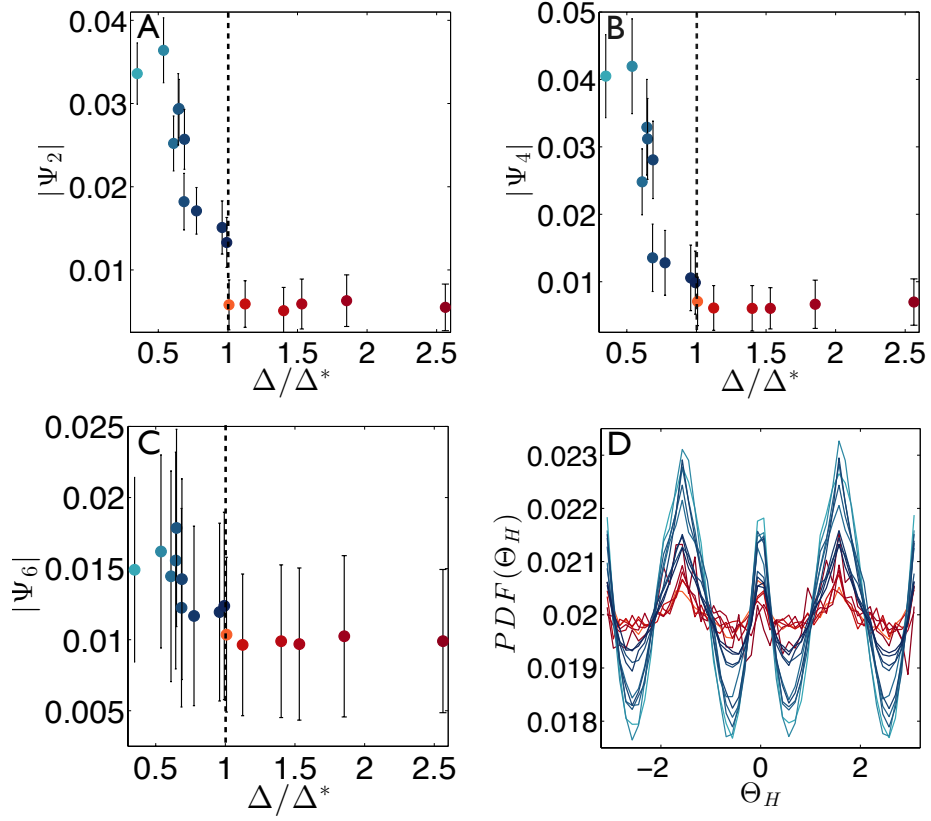


FIGURE 4.9: A. Module du paramètre d'ordre orientationnel $|\Psi_2|$ en fonction de Δ/Δ^* . B. Module du paramètre d'ordre orientationnel $|\Psi_4|$ en fonction de Δ/Δ^* . C. Module du paramètre d'ordre orientationnel $|\Psi_6|$ en fonction de Δ/Δ^* . Les barres d'erreur correspondent à la variance temporelle. Ces quantités diminuent avec l'amplitude en dessous de la transition et restent constantes et très faibles au delà de la transition. D. Distribution des angles entre particules plus proches voisines et l'axe (Ox) pour les différentes amplitudes Δ .

l'amplitude. Le système s'organise en ligne, carré ou hexagone autour de certaines particules pour les faibles amplitudes. Ces structures disparaissent peu à peu lorsque Δ augmente et sont quasiment absentes pour $\Delta > \Delta^*$.

L'origine de la formation de ces structures n'est pas encore comprise. Elles sont sûrement la conséquence des interactions hydrodynamiques entre les gouttes couplées à l'asymétrie du canal d'étude. En effet, les lignes observées figure 4.8A ont tendance à s'arranger selon la direction de l'écoulement (Ox). Cette observation est confirmée par la figure 4.10A où sont tracées les distributions des angles Θ_H entre le vecteur reliant deux particules plus proches voisines et l'axe (Ox). En effet pour les faibles amplitudes ces distributions sont nettement piquées sur $\Theta_H = 0$ et $\pm\pi$. De plus, deux grands et larges pics sont présents en $\Theta_H = \pm\pi/2$ montrant que les gouttes composant ces lignes se superposent selon l'axe (Oy), voir 4.9D. Lorsque l'amplitude augmente les valeurs de ces différents maxima diminuent pour tendre vers des distributions beaucoup plus uniformes au dessus de la transition.

La conséquence de l'apparition de ces structures à faibles amplitudes sur la dynamique de l'émulsion n'a pas encore été identifiée. Notamment la question du lien entre cet ordre orientationnel et la réversibilité peut être légitimement adressée au vue de l'apparente discontinuité présente dans l'évolution de $|\Psi_2|$ à la transtion. Précisément, quel est le rôle de l'alignement des particules sur la protection de la réversibilité ? Il serait intéressant pour sonder ce lien de mesurer les paramètres d'ordre orientationnel dans les clusters réversibles et irréversibles, de la même façon que pour la fonction de corrélation de paire.

Je termine ce chapitre sur une dernière section consacrée aux perspectives possibles sur ce système afin de comprendre plus en détail cette transition vers l'irréversibilité.

4.2.2 Nouvelles perspectives sur la dynamique oscillante

Statistique des déplacements

Dans la section 4.1, j'ai introduit une nouvelle mesure de la réversibilité basée sur la décomposition en cellules de Voronoï. Cette mesure d'ordre topologique permet de minimiser l'impact de la résolution spatiale du système expérimental sur la dynamique observée. On peut tout de même se poser la question de la dynamique moyenne des déplacements des particules.

Ainsi une quantité beaucoup plus usuelle que la fidélité peut être mesurée, à savoir le déplacement quadratique moyen (MSD) par cycle. Cette quantité est calculée de la façon suivante (dans la direction (Ox)) :

$$\delta x^2(p) = \frac{1}{N} \sum_{j=1}^N \left[x_j(pT + T) - x_j(pT) \right]^2 \quad (4.5)$$

où x_j est la position de la particule j selon l'axe (Ox), N est le nombre de particules et p le numéro du cycle. L'étude est conduite lorsqu'un régime permanent est atteint, donc le MSD par cycle est aussi une quantité stationnaire.

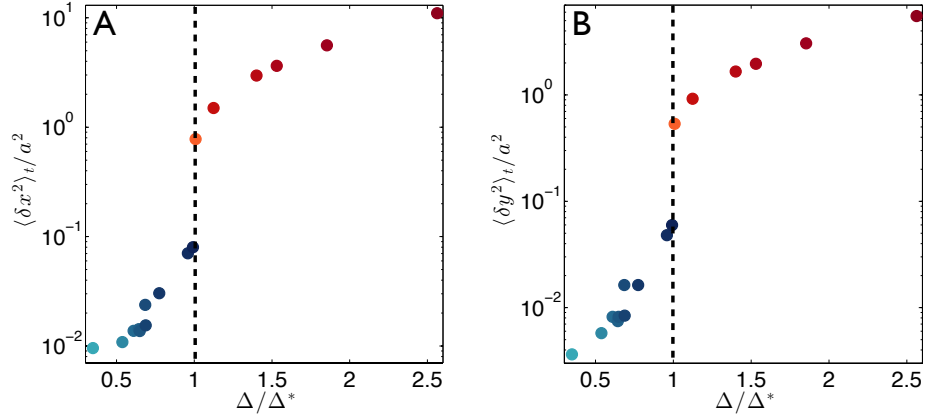


FIGURE 4.10: Déplacement quadratique moyen (MSD) par cycle moyenné sur le temps selon x (A) et selon y (B) adimensionné par le diamètre des gouttes a^2 en fonction de l'amplitude Δ/Δ^* .

La moyenne temporelle de cette quantité est donnée en fonction de l'amplitude Δ/Δ^* selon x et y figure 4.10. Le MSD est adimensionné par le diamètre des gouttes a^2 . Une transition très abrupte est clairement observée pour $\Delta = \Delta^*$. La valeur du MSD gagne quasiment un ordre de grandeur lorsque l'amplitude augmente de seulement 2% à travers la transition. Cette mesure est en complet accord avec la mesure topologique faite grâce à la fidélité \mathcal{F} . De plus, elle nous permet d'affirmer qu'il existe une asymétrie dans la statistique des déplacements. La valeur du MSD selon x est plus importante que selon y , montrant que les gouttes diffusent plus dans la direction de l'écoulement x .

Si l'on regarde maintenant les statistiques des déplacements stroboscopés des gouttes en fonction de l'amplitude, une observation très intéressante peut être faite. En effet, la PDF des déplacements (fonction de Van Hove) selon x et selon y exhibe une transition très nette entre une statistique exponentielle pour $\Delta < \Delta^*$ et une statistique gaussienne pour $\Delta > \Delta^*$, voir figure 4.11A et B. Ces PDF sont tracées en adimensionnant les déplacements δx et δy par la racine carrée du MSD. Elles se superposent clairement sur deux courbes maîtresses, du moins pour les faibles déplacements. La transition entre une statistique exponentielle et une statistique gaussienne est bien saisie par le tracé du cumulants d'ordre 4 des distributions $\kappa_4 = \mu_4 - 3\mu_2^2$, où μ_i est le moment centré d'ordre i de la distribution, voir figures 4.11C et 4.11D. Cette quantité permet de mesurer l'écart d'une distribution à une gaussienne, la valeur de κ_4 pour cette dernière étant nulle. On note que κ_4 prend des valeurs autour de 3 dans la direction (Ox) et 4 dans la direction (Oy) pour les amplitudes inférieures à Δ^* . Ceci n'est pas vrai pour la plus faible amplitude où la distribution semble être plus proche d'une exponentielle étirée. Cette observation doit être confirmée par d'autres expériences à faibles amplitudes. Par ailleurs la distribution tend vers une vraie

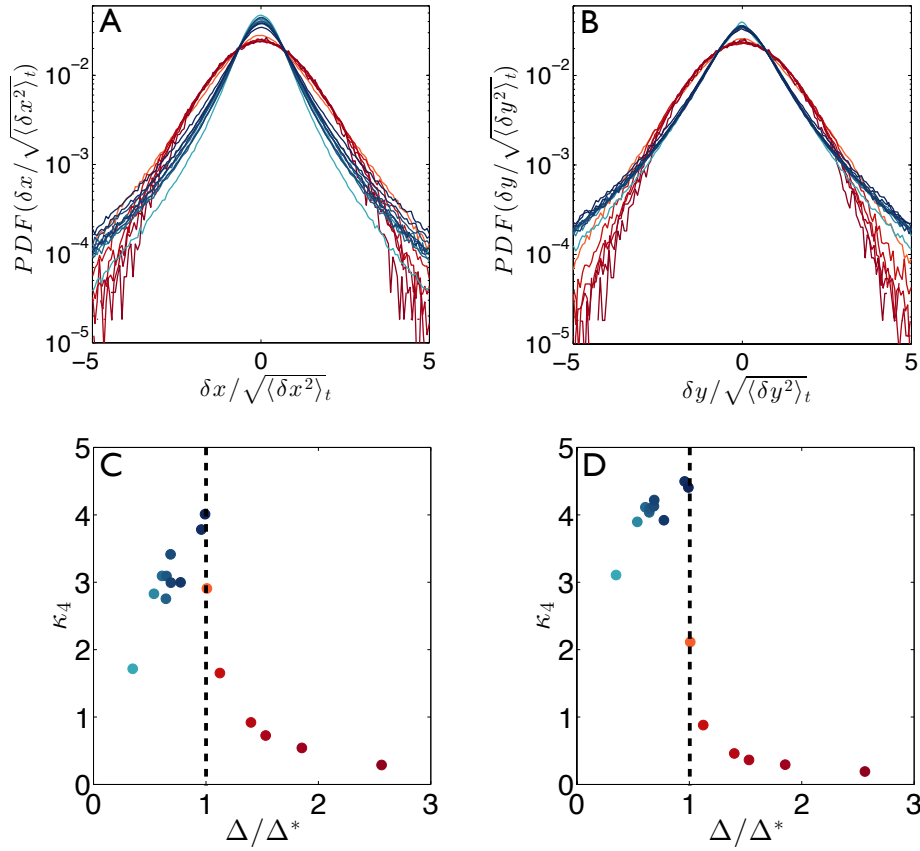


FIGURE 4.11: A. Distributions des déplacements selon x sur un cycle, δx , adimensionnés par la valeur du MSD, $\sqrt{\langle \delta x^2 \rangle_t}$, pour les différentes amplitudes sondées. B. Distributions des déplacements selon y sur un cycle, δy , adimensionnés par la valeur du MSD, $\sqrt{\langle \delta y^2 \rangle_t}$, pour les différentes amplitudes sondées. Une transition très nette est observée entre une statistique exponentielle à basse amplitude et une distribution gaussienne pour $\Delta > \Delta^*$. C. Cumulant d'ordre 4 de la distribution des déplacements selon x en fonction de l'amplitude. D. Même tracé que C pour les distributions selon y .

gaussienne lorsque $\Delta \rightarrow \infty$.

Ces observations indiquent que la dynamique aux faibles amplitudes est spatialement hétérogène. En effet, une distribution exponentielle montre que les grands déplacements ainsi que les très faibles ont un poids important dans la statistique comparé à une distribution normale. En dessous de la transition la majorité des particules ont une dynamique réversible (i.e. reviennent dans leur cage de Voronoï) donnant des déplacements faibles sur un cycle. Dans certaines zones cependant la dynamique est irréversible et les déplacements associés sont importants. De plus, les queues des distributions exponentielles sont de plus en plus importantes lorsque l'amplitude augmente, montrant que le nombre et/ou la taille des zones irréversibles croissent. Il serait encore une fois intéressant de tracer ces PDF dans la phase réversible et dans la phase irréversible du système. La première devant donner vraisemblablement une statistique exponentielle alors que la seconde conduirait à une statistique gaussienne.

En revanche, au dessus de la transition $\Delta > \Delta^*$ la dynamique est beaucoup plus homogène. Les particules ont quasiment toutes une dynamique irréversible et seulement une petite fraction des gouttes retourne dans leur cage de Voronoï de manière stochastique. Ainsi la distribution des déplacements suit une loi normale.

Ces distributions exponentielles observées à faible amplitude sont-elles une particularité de notre système? N'ont-elles pas un caractère universel? La question peut-être légitimement posée au regard des résultats de Düring *et al* dans [26]. Dans cet article, les auteurs étudient numériquement la réversibilité de 2 systèmes dynamiques Hamiltoniens auxquels est rajouté un bruit gaussien et dont la dynamique est inversée après chaque intervalle de temps $T/2$ écoulé. Pour chacun des 2 systèmes la distribution de probabilité de la diffusivité des particules individuelles est exponentielle quelque soit la valeur de T . De plus les queues s'élargissent lorsque T augmentent, exhibant une propriété similaire à ce qui est observé dans le système présenté ici lorsque l'amplitude Δ croît.

Une des perspectives d'étude serait donc de regarder plus en détail les propriétés dynamiques de ces divers systèmes afin de comprendre si les caractéristiques communes observées ont une origine physique universelle.

Hétérogénéités dynamiques

Comme relaté dans la section 4.1 et la partie précédente, en deçà de la transition la dynamique est hétérogène. Des agrégats de particules ayant une dynamique irréversible sur 1 cycle se forment. La taille et le nombre de ces agrégats augmentent lorsque l'amplitude Δ approche Δ^* . De plus, ces agrégats sont caractérisés par une structure identique à la structure observée au dessus de la transition, voir figures 4.5a et 4.5b. Ces hétérogénéités sont ici sondées sur une échelle de temps unique de 1 cycle. Mais n'existerait-il pas au sein de l'émulsion des mouvements corrélés de particules sur des échelles de temps pouvant dépendre de l'amplitude, de la même façon que dans les systèmes vitreux où une longueur de corrélation dynamique émerge à l'approche de la transition? Je présente ici des résultats très préliminaires sur l'étude de ces hétérogénéités.

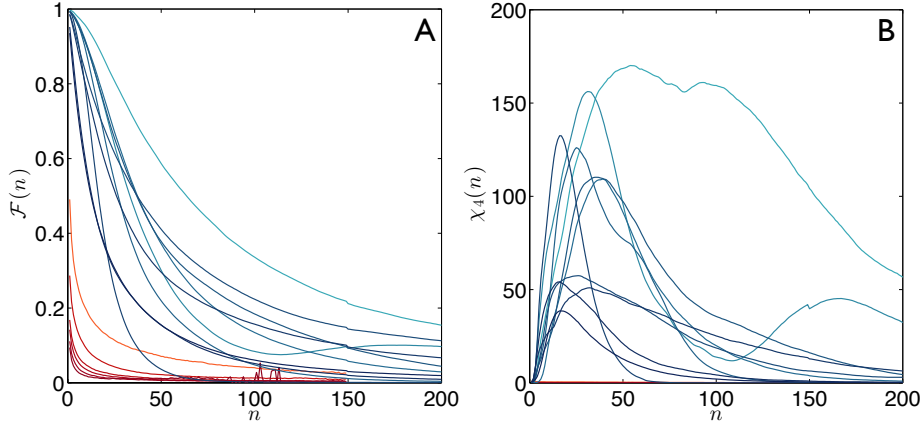


FIGURE 4.12: A. Fidélité $\mathcal{F}(n)$ en fonction du nombre de cycles n pour les différentes amplitudes. B. Susceptibilité $\chi_4(n)$ en fonction du nombre de cycles n pour les différentes amplitudes.

J'utilise pour sonder ces hétérogénéités des outils utilisés maintenant communément pour l'étude des systèmes vitreux à savoir les fonctions de corrélation à 4 points [18, 19, 32]. La fidélité \mathcal{F} introduite précédemment est une fonction "overlap" comparant 2 conformations du système. Je me suis restreint pour l'instant à l'étude entre 2 conformations de l'émulsion séparées seulement d'un cycle d'oscillation. Mais je peux également définir la fidélité $\mathcal{F}(n)$ comparant les conformations séparées de n cycles. Cette quantité est mesurée en comptant la fraction de gouttes restant, au temps $t = (p + n)T$, dans la cage de Voronoï qu'elles occupaient au temps $t = pT$, puis en moyennant sur le nombre total de cycles p . L'étude des fluctuations de la fidélité à travers la susceptibilité :

$$\chi_4(n) = N[\langle \mathcal{F}(n)^2 \rangle_p - \langle \mathcal{F}(n) \rangle_p^2] \quad (4.6)$$

donne une mesure du nombre typique de particules impliquées dans des mouvements corrélés sur un temps n . Dans cette équation N est le nombre de particules total. L'évolution de ces 2 grandeurs \mathcal{F} et χ_4 avec n est représentée figure 4.12 pour les différentes amplitudes. Peu importe l'amplitude, la fidélité $\mathcal{F}(n)$ décroît et tend vers 0 pour $n \gg 1$. Cela montre que même au très faibles amplitudes la dynamique n'est pas complètement réversible. Au bout d'un grand nombre de cycles toutes les particules auront diffusées suffisamment pour sortir de leur cage de Voronoï initiale. De plus, on peut noter que l'évolution de $\mathcal{F}(n)$ avec Δ n'est pas monotone. En effet, pour quelques amplitudes la décroissance de $\mathcal{F}(n)$ est plus rapide que pour les amplitudes proches. Cette observation n'est à ce jour pas du tout comprise.

L'évolution de $\chi_4(n)$, quant à elle, est caractérisée, pour $\Delta < \Delta^*$, par la présence d'un maximum dont la valeur et la localisation varient avec l'amplitude. L'existence de ce maximum est la conséquence de l'émergence d'une échelle

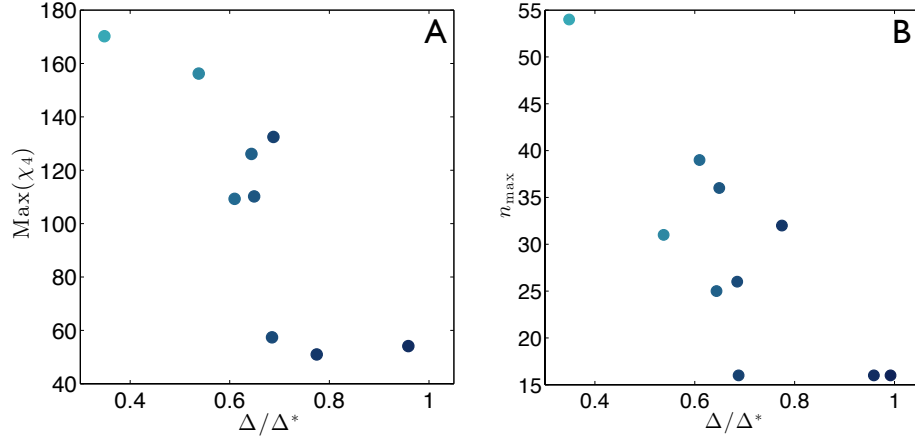


FIGURE 4.13: A. Valeur du maximum de la susceptibilité $\chi_4(n)$ en fonction de l'amplitude Δ/Δ^* pour $\Delta < \Delta^*$. B. Valeur n_{max} pour lequel le maximum de $\chi_4(n)$ est obtenu en fonction de l'amplitude Δ/Δ^* pour $\Delta < \Delta^*$.

typique d'hétérogénéités dynamiques qu'il est tentant de relier au nombre de particules dans une même zone réversible (i.e. séparée par des clusters de particules irréversibles). Le temps n_{max} correspondant à ce maximum donne la durée de vie typique de ces zones réversibles. La valeur du maximum et le temps n_{max} sont représentés figure 4.13 en fonction de l'amplitude Δ/Δ^* (pour $\Delta < \Delta^*$). On remarque une tendance très nette à la diminution de ces 2 quantités avec l'amplitude. Contrairement à ce qu'on observe dans les systèmes vitreux [32, 33, 34], ces quantités ne divergent pas autour d'une valeur finie du paramètre de contrôle. Ici lorsque l'amplitude tend vers 0, la coopérativité des réarrangements augmente fortement conduisant à la formation de zones réversibles plus grandes et de durées de vie plus importantes. En revanche, au dessus de la transition, $\chi_4(n)$ est une fonction décroissante de n et prend des valeurs très proches de 0, montrant que chaque particule a une dynamique très décorrélée de celle des autres.

Ces résultats très préliminaires sont loin d'être compris totalement, mais ils donnent des perspectives très intéressantes pour la suite. Il serait en effet captivant d'étudier une fonction de type "overlap" coarse-grainée sur une échelle ℓ afin de localiser le maximum de la susceptibilité associée en fonction du nombre de cycles n et de cette échelle ℓ . Ceci donnerait une information sur la taille réelle typique des zones réversibles et pourrait être mis à profit pour comprendre en détail les mécanismes induisant la chute/la protection de la réversibilité dans ce système.

4.3 Bibliographie

- [1] Taylor, G. I. National Committee for Fluid Mechanics Films (1966). URL <http://web.mit.edu/hml/ncfmf.html>. Education Development Center, Newton, MA.
- [2] Pine, D. J., Gollub, J. P., Brady, J. F. & Leshansky, A. M. Chaos and threshold for irreversibility in sheared suspensions. *Nature* **438**, 997–1000 (2005).
- [3] Gorin, T., Prosen, T., Seligman, T. H. & Žnidarič, M. Dynamics of Loschmidt echoes and fidelity decay. *Physics Reports* **435**, 33–156 (2006).
- [4] Okuma, S., Tsugawa, Y. & Motohashi, A. Transition from reversible to irreversible flow : Absorbing and depinning transitions in a sheared-vortex system. *Physical Review B* **83**, 012503 (2011).
- [5] Aref, H. Stirring by chaotic advection. *Journal of Fluid Mechanics* **143**, 1 (1984).
- [6] Slotterback, S. *et al.* Onset of irreversibility in cyclic shear of granular packings. *Physical Review E* **85**, 021309 (2012).
- [7] Hébraud, P., Lequeux, F., Munch, J. & Pine, D. Yielding and Rearrangements in Disordered Emulsions. *Physical Review Letters* **78**, 4657–4660 (1997).
- [8] Metzger, B. & Butler, J. E. Clouds of particles in a periodic shear flow. *Physics of Fluids* **24**, 021703 (2012).
- [9] Keim, N. C. & Arratia, P. E. Yielding and microstructure in a 2D jammed material under shear deformation. *Soft Matter* **9**, 6222–6225 (2013).
- [10] Swendsen, R. H. Explaining irreversibility. *American Journal of Physics* **76**, 643 (2008).
- [11] Corté, L., Chaikin, P. M., Gollub, J. P. & Pine, D. J. Random organization in periodically driven systems. *Nature Physics* **4**, 420–424 (2008).
- [12] Metzger, B. & Butler, J. Irreversibility and chaos : Role of long-range hydrodynamic interactions in sheared suspensions. *Physical Review E* **82**, 1–4 (2010).
- [13] Mangan, N. & Reichhardt, C. Reversible to Irreversible Flow Transition in Periodically Driven Vortices. *Physical Review Letters* **100**, 187002 (2008).
- [14] Menon, G. I. & Ramaswamy, S. Universality class of the reversible-irreversible transition in sheared suspensions. *Physical Review E* **79**, 1–4 (2009).
- [15] Supplementary Movie 1 available at URL <https://blog.espci.fr/raphaeljeanneret/files/2013/10/video1.mov>.
- [16] Supplementary Movie 2 available at URL <https://blog.espci.fr/raphaeljeanneret/files/2013/10/video2.mov>.
- [17] Supplementary Movie 3 available at URL <https://blog.espci.fr/raphaeljeanneret/files/2013/10/video3.mov>.

- [18] Abate, a. & Durian, D. Topological persistence and dynamical heterogeneities near jamming. *Physical Review E* **76**, 021306 (2007).
- [19] Dauchot, O., Durian, D. & Hecke, V. Dynamical heterogeneities in grains and foams. *arXiv* (2010).
- [20] Guyon, E., Hulin, J.-P. & Petit, L. *Physical Hydrodynamics* (Oxford University Press, Oxford, 2001).
- [21] Rouyer, F., Lhuillier, D., Martin, J. & Salin, D. Structure, density, and velocity fluctuations in quasi-two-dimensional non-Brownian suspensions of spheres. *Physics of Fluids* **12**, 958 (2000).
- [22] Supplementary Movie 4 available at URL <https://blog.espci.fr/raphaeljeanneret/files/2013/10/video4.mov>.
- [23] Supplementary Movie 5 available at URL <https://blog.espci.fr/raphaeljeanneret/files/2013/10/video5.mov>.
- [24] Supplementary Movie 6 available at URL <https://blog.espci.fr/raphaeljeanneret/files/2013/10/video6.mov>.
- [25] Drazer, G., Koplik, J., Khusid, B. & Acrivos, A. Deterministic and stochastic behaviour of non-Brownian spheres in sheared suspensions. *Journal of Fluid Mechanics* **460**, 307–335 (2002).
- [26] Düring, G., Bartolo, D. & Kurchan, J. Irreversibility and self-organization in hydrodynamic echo experiments. *Physical Review E* **79**, 030101 (2009).
- [27] Desreumaux, N., Caussin, J.-B., Jeanneret, R., Lauga, E. & Bartolo, D. Hydrodynamic Fluctuations in Confined Particle-Laden Fluids. *Physical Review Letters* **111**, 118301 (2013).
- [28] Schneider, T. M., Mandre, S. & Brenner, M. P. Algorithm for a Microfluidic Assembly Line. *Physical Review Letters* **106**, 094503 (2011).
- [29] Yi, G.-R., Pine, D. J. & Sacanna, S. Recent progress on patchy colloids and their self-assembly. *Journal of physics. Condensed matter : an Institute of Physics journal* **25**, 193101 (2013).
- [30] Dendukuri, D. & Doyle, P. S. The Synthesis and Assembly of Polymeric Microparticles Using Microfluidics. *Advanced Materials* **21**, 4071–4086 (2009).
- [31] Crocker, J. & Grier, D. Methods of digital video microscopy for colloidal studies. *Journal of colloid and interface science* **179**, 298–310 (1996).
- [32] Berthier, L., Biroli, G., Bouchaud, J.-P., Cipelletti, L. & van Saarloos, W. *Dynamical heterogeneities in glasses, colloids and granular media* (Oxford University Press, Oxford, 2011).
- [33] Dauchot, O., Marty, G. & Biroli, G. Dynamical Heterogeneity Close to the Jamming Transition in a Sheared Granular Material. *Physical Review Letters* **95**, 265701 (2005).
- [34] Nordstrom, K., Gollub, J. & Durian, D. Dynamical heterogeneity in soft-particle suspensions under shear. *Physical Review E* **84**, 1–8 (2011).

CHAPITRE 5

Trafic de particules dans un réseau unidimensionnel de boucles

Dans les précédents chapitres, j'ai présenté des résultats concernant la dynamique de particules confinées à 2 dimensions. Dans ce type de géométrie, les perturbations induites par les particules sur l'écoulement introduisent des interactions hydrodynamiques à longue portée entre celles-ci ($\sim 1/r^2$). L'ajout d'un confinement supplémentaire à l'une des 2 directions spatiales a pour effet d'écranter ces interactions longue portée de manière exponentielle en la taille du confinement [1]. Ainsi, si la géométrie tend vers un système unidimensionnel, les interactions hydrodynamiques deviennent très courte portée. Des particules diluées s'écoulant dans un canal unidimensionnel ne sont alors plus en interaction et la dynamique du système devient triviale.

Cette image simple se complique dans des géométries non-linéaires telles qu'une boucle, à savoir un canal se séparant en 2 chemins se reconnectant en aval, voir figure 5.1A. Cette géométrie est la plus simple donnant lieu à des interactions hydrodynamiques à longue portée dans un système unidimensionnel. La raison pour cela repose sur 2 faits expérimentaux : (i) une goutte, arrivant à une jonction où un canal se sépare en 2 chemins, emprunte toujours le chemin de vitesse la plus élevée, c'est à dire de débit le plus important [2]. Pour le cas d'une boucle où la différence de pression aux extrémités des 2 chemins est identique et en raison de la loi de Darcy $Q = \Delta P/R_H$, la goutte emprunte le chemin de résistance la plus faible. (ii) La présence d'une particule dans un canal unidimensionnel bouche partiellement celui-ci, augmentant sa résistance hydrodynamique. La combinaison de ces 2 propriétés implique que la dynamique de gouttes au passage d'une boucle dépend du taux d'occupation de chacune des branches, induisant des interactions effectives à longue portée (de l'ordre de la taille de la boucle).

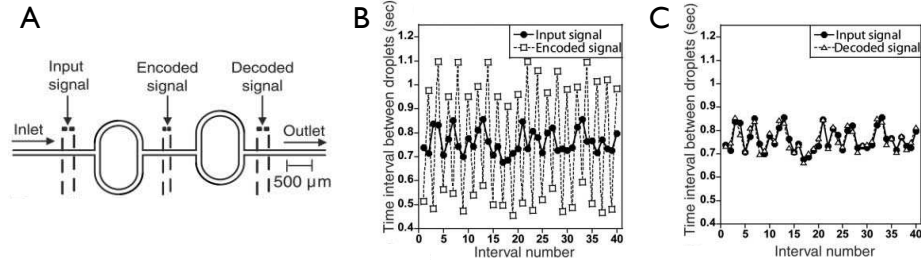


FIGURE 5.1: Figures extraites de [3]. A. 2 boucles identiques placées en série. B. La séquence initiale (disques noirs) est codée au passage de la première boucle. C. Après passage dans la seconde boucle, le signal est décodé : les cercles blancs se superposent aux disques noirs.

De nombreuses études ont déjà été conduites sur ce type de système montrant que, même dans cette géométrie minimale, la dynamique observée est très complexe [2, 3, 4, 5, 6]. En l'occurrence, dans [3] ("Coding/Decoding and reversibility of droplet trains in microfluidic networks", *Science* **315**, 828-32 (2007)), les auteurs reportent les résultats étonnants de 2 expériences utilisant cette géométrie : une expérience d'écho et une expérience de trafic.

Tout d'abord, ils font passer un train de taille finie de gouttes uniformément séparées à travers une boucle puis le renvoie dans celle-ci en inversant l'écoulement. Cette expérience d'écho révèle une dynamique réversible pour les gouttes : celles-ci retrouvent leurs positions initiales après un aller-retour à travers la boucle. Ce résultat est surprenant du fait de la règle de trafic aux jonctions de la boucle, évoquée précédemment, qui brise la réversibilité des écoulements des fluides. Cette brisure de symétrie est illustrée sur un exemple simple figure 5.2A : considérons un train fini de gouttes dont la séparation initiale entre particules implique que la dernière prenne le chemin de résistance la plus grande R_{\uparrow} . Une fois que le train a traversé entièrement la boucle, le sens de l'écoulement est inversé. Alors cette dernière particule rentre la première dans la boucle et emprunte nécessairement la branche de résistance la plus petite R_{\downarrow} . Dès lors la symétrie est brisée et le motif obtenu lorsque toutes les gouttes auront traversé la boucle ne sera pas le même que l'arrangement initial. Il est à noter que cette règle de trafic ne contredit pas l'invariance par renversement du temps des équations de Stokes. En effet, cette loi n'a été observée que pour des objets déformables (gouttes, bulles) ayant un temps de relaxation finie, brisant la réciprocité des écoulements. Pour une particule solide la règle serait différente : le chemin emprunté est déterminé par la position du centre de la particule par rapport à la ligne de courant conduisant au point d'arrêt sur la boucle. Cette deuxième règle ne brise pas la réversibilité des écoulements.

L'expérience de trafic quant à elle utilise 2 boucles placées en série, voir figure 5.1A. Un train de taille finie de gouttes uniformément séparées est également envoyé dans le système. Le passage à travers la première boucle modifie les dis-

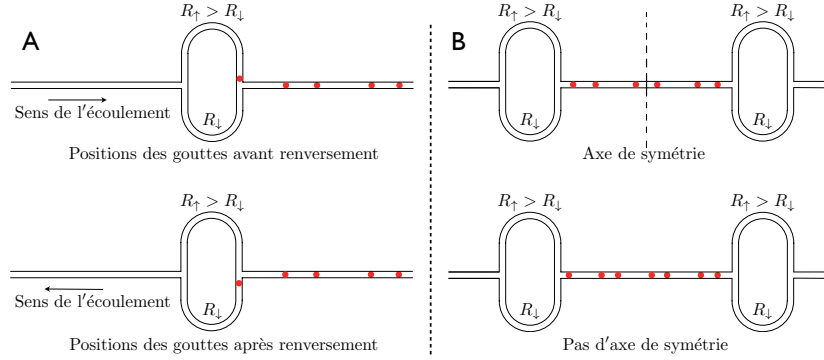


FIGURE 5.2: A. Illustration de la brisure de symétrie temporelle par la présence de la boucle. B. Illustration de la non-équivalence entre ajout d'une seconde boucle et inversion de l'écoulement.

tances inter-particules. Le signal défini par la séquence des intervalles de temps entre gouttes est alors codé, voir figure 5.1B. La deuxième boucle quant à elle décode ce signal pour redonner la séquence initiale, voir figure 5.1C. De plus, même le bruit sur le signal initial est décodé! Au vue des résultats de leur première expérience, ce processus de codage/décodage est justifié par l'équivalence existant entre l'ajout d'une seconde boucle et l'inversion de l'écoulement dans le système mono-boucle. Or il ne peut y avoir équivalence entre ces 2 systèmes que si le train de gouttes obtenu en sortie de la première boucle possède une symétrie avant/arrière, voir figure 5.2B.

Ainsi les résultats obtenus dans [3], contrairement à ce que les conclusions de l'article suggéraient, ne peuvent pas être compris par un principe premier tel qu'une loi de conservation ou un argument de symétrie, mais sont plutôt la conséquence particulière d'une dynamique complexe valable pour un jeu restreint de paramètres.

Toutes les études précédentes dans cette géométrie implique un nombre important de gouttes $N_p \gg 1$ voyageant dans 1 ou 2 boucle(s) maximum. La dynamique associée est donc très complexe du fait du grand nombre de degrés de liberté. De plus ces études ne sondent que des dynamiques transitoires où le système n'a pas eu le temps de s'auto-organiser dans un état stationnaire. Le problème est ici abordé sous un angle différent en s'intéressant à la dynamique de 3 corps évoluant dans un très large réseau de boucles identiques, voir figure 5.3.

Je présente tout d'abord de manière détaillée le modèle permettant de représenter simplement la dynamique des gouttes dans ce système unidimensionnel. Ensuite, je fournis quelques résultats numériques sur un système à grand nombre de gouttes pour montrer que la dynamique sondée dépend très fortement des conditions initiales. Finalement, je me focalise sur l'étude asymptotique à 3 corps. Sur cette dernière partie, l'étude combine des outils numériques, analy-

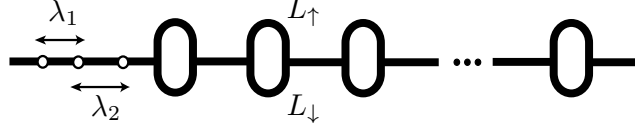


FIGURE 5.3: Schéma du système étudié : 3 gouttes sont advectionnées dans un réseau unidimensionnel de boucles. λ_2 (resp. λ_1) est la distance entre les 2 gouttes de droite (resp. de gauche).

tiques et expérimentaux.

5.1 Dynamique d'une goutte dans un réseau unidimensionnel

La dynamique d'une goutte dans un réseau unidimensionnel est très bien modélisée par les 3 règles empiriques décrites ci-dessous et schématisées figure 5.4.

Tout d'abord, la vitesse d'une particule v_p est proportionnelle à la vitesse moyenne du fluide porteur $v_F = Q/S$, où Q est le débit de la phase continue et S la section du canal, voir figure 5.4A.

$$v_p = \beta v_F = \beta \frac{Q}{S} \quad (5.1)$$

Le coefficient de proportionnalité β dépend de manière complexe de nombreux paramètres tel que η_1/η_2 , R/w , R/h , Ca, \dots où η_1 , η_2 sont les viscosités des 2 fluides considérés, R le rayon de la particule, w et h les dimensions du canal perpendiculairement à l'écoulement et Ca le nombre capillaire [7]. Ce coefficient β a été calculé analytiquement dans le cas d'une bulle s'écoulant dans une conduite cylindrique par Bretherton [8]. Dans toute la suite, les particules considérées sont de même taille et voyagent dans des canaux de section constante. Elles sont donc transportées à la même vitesse. De plus, on fait l'approximation que l'influence du nombre capillaire est négligeable, permettant de considérer ce nombre β indépendant de la vitesse du fluide. Ainsi la vitesse des particules v_p peut être identifiée à la vitesse moyenne du fluide v_F .

De plus, une particule se comporte comme un bouchon mobile dans le canal. Ceci tend à réduire le débit dans ce canal. Cette propriété se modélise très bien mathématiquement par l'ajout d'une résistance hydrodynamique R_p pour le canal où se trouve la goutte, voir figure 5.4B. Les quantités β et R_p sont corrélées. Cette dernière dépend également du volume de la goutte, de sa viscosité et de sa vitesse [9]. De la même façon, on néglige dans toute la suite la dépendance en vitesse de cette résistance R_p pour la considérer comme constante. De plus, la résistance hydrodynamique d'un canal de longueur L est proportionnelle à cette longueur, $R_H = AL$, avec un facteur de proportionnalité A dépendant seulement de la géométrie du canal et de la viscosité du fluide. On peut donc

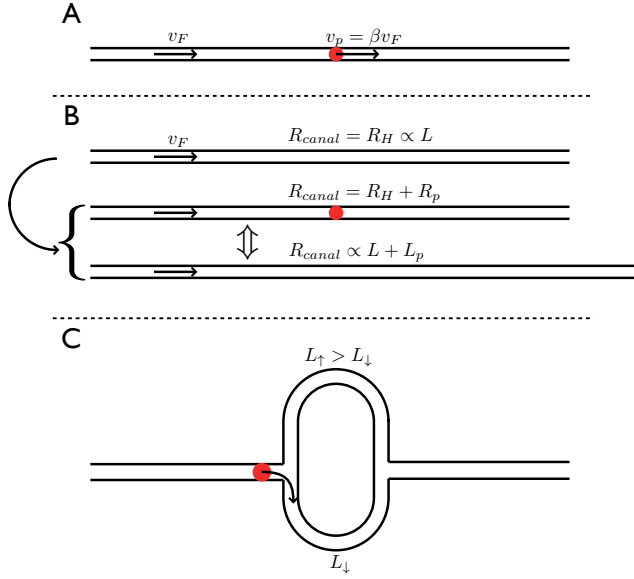


FIGURE 5.4: Schémas illustrant les 3 règles du modèle pour la dynamique de gouttes dans un réseau unidimensionnel.

assimiler la résistance d'une goutte R_p à une longueur $L_p = R_p/A$. Ainsi la présence d'une goutte a pour effet d'augmenter de manière effective la longueur du canal dans lequel elle se trouve d'une longueur L_p , voir figure 5.4B.

Finalement, en ce qui concerne la règle de trafic à une bifurcation, il est avéré expérimentalement qu'une goutte emprunte toujours le chemin où le débit est le plus important. Ceci est toujours observé lorsque les sections des canaux constituant la bifurcation sont identiques. Pour une géométrie asymétrique la règle de trafic peut être beaucoup plus complexe [10]. Dans le cas d'une boucle où la différence de pression entre les 2 branches est la même, la goutte emprunte la branche de résistance la plus faible ou en d'autres mots de longueur la plus petite, voir figure 5.4C. Dans toute la suite j'appelle L_{\uparrow} (resp. L_{\downarrow}) la longueur de la branche la plus grande (resp. la plus petite). Comme précisé dans l'introduction, cette règle de trafic est spécifique à des particules déformables, telles que des gouttes.

Le modèle utilisé pour rendre compte de la dynamique de gouttes dans des réseaux unidimensionnels est basé sur ces 3 règles ainsi que sur l'analogie avec les lois de Kirchhoff de l'électrocinétique pour l'écoulement du fluide porteur.

Je présente dans la suite quelques résultats numériques pour la dynamique à grand nombre de particules, puis l'étude à 3 corps combinant simulations numériques, calculs analytiques et expériences.

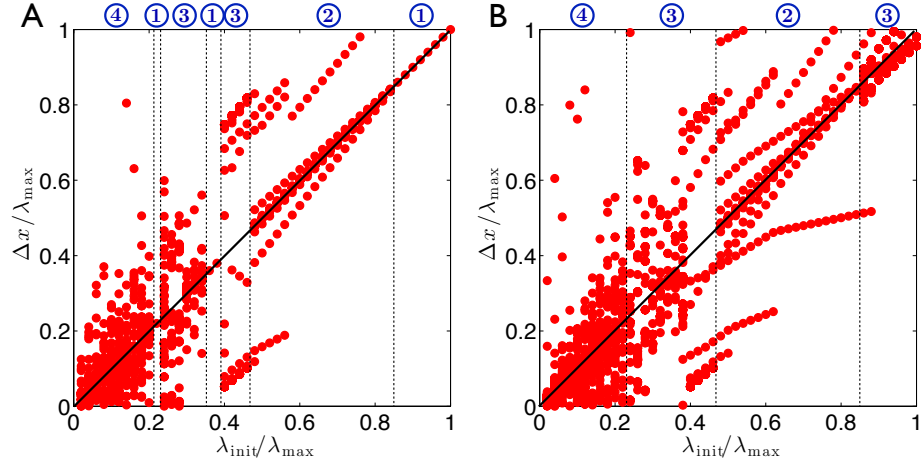


FIGURE 5.5: Diagramme de bifurcation du processus d'aller-retour à travers la boucle.

5.2 Quelques résultats numériques pour $N_p \gg 1$

Cette étude à grand nombre de particules, similaire à celle effectuée par Schindler *et al* dans [6], a permis de valider l'algorithme utilisé pour modéliser la dynamique des gouttes. Le rapport des longueurs des branches est égal à celui utilisé expérimentalement par Fuerstman *et al* et numériquement par Schindler *et al*, à savoir $L_\uparrow/L_\downarrow = 1.112$. De plus, la résistance des gouttes est la même que dans [6], $L_p/L_\downarrow = 1.5$. Le nombre de gouttes est fixé à 40.

Les simulations présentées ici reprennent les 2 expériences (écho et trafic) de Fuerstman *et al* [3] évoquées en introduction du chapitre. La dynamique d'un train de gouttes uniformément séparées initialement est étudiée à travers un aller-retour dans une boucle ainsi que lors du passage dans 2 boucles identiques. La distance initiale entre les gouttes est notée λ_{init} et est variée entre $[0.02\lambda_{\text{max}}, \lambda_{\text{max}}]$ par pas de $0.02\lambda_{\text{max}}$. λ_{max} est la distance maximale entre 2 gouttes pour qu'elles interagissent à travers la boucle. Concrètement c'est la distance à partir de laquelle la première goutte sort de la boucle avant que la seconde n'y entre. Son expression est donnée par $\lambda_{\text{max}} = L_\downarrow[1 + (L_p + L_\downarrow)/L_\uparrow]$.

La figure 5.5 présente le diagramme de bifurcation de chacun de ces 2 systèmes en représentant les distances finales $\Delta x/\lambda_{\text{max}}$ entre les gouttes en fonction de la distance initiale $\lambda_{\text{init}}/\lambda_{\text{max}}$. Le point le plus important à noter est que ces 2 diagrammes ne sont en aucun cas identiques. Ils possèdent des similarités mais la dynamique relative n'est jamais la même. Il n'est donc pas du tout équivalent d'inverser l'écoulement ou de rajouter une deuxième boucle au système. La dynamique conduit à 4 régimes différents en fonction de la séparation initiale. Ces 4 régimes sont décrits ci-dessous.

— Le régime n°1 correspond au décodage total du train de gouttes initial.

En effet, toutes les distances finales Δx sont égales à la distance λ_{init} (points sur la première bissectrice). Ce régime n'est obtenu que pour le système aller-retour et n'a aucune raison a priori d'apparaître.

- Le deuxième régime exhibe un décodage partiel du train de gouttes initial. Les distances Δx sont égales à λ_{init} seulement dans le volume du train de gouttes. Les gouttes aux bords du train ont une dynamique différente. Ceci montre que les conditions aux limites du problème ont un rôle très important dans la dynamique. De plus, cet état n'est pas un état stationnaire. En effet, des itérations supplémentaires du processus conduirait à la destruction du décodage en raison de la déstabilisation par les bords. Il est à noter que les résultats de Fuerstman *et al* ont surement été obtenus dans ce régime.
- Le régime n°3 correspond à l'obtention d'un motif multipériodique pour le train final et ceci seulement dans le volume du train. Encore une fois, cet état n'est pas stationnaire.
- Le dernier régime est celui pour lequel aucune symétrie particulière n'est obtenue sur le train de gouttes final. Les gouttes s'arrangent selon une séquence aléatoire.

Deux points sont à retenir de cette étude à $N_p \gg 1$: (i) il n'y a aucune équivalence entre l'expérience d'écho et l'expérience de trafic. Les 2 systèmes conduisent à des résultats similaires mais pas identiques. (ii) Les régimes observés ne sont que des régimes transitoires pour lesquels les conditions initiales et les conditions aux limites ont un rôle crucial. Il est donc difficile d'en tirer des conclusions génériques et robustes sur les processus d'interactions entre objets advectés dans des réseaux, même aussi simples que ceux-ci.

Dans la suite, le choix a été fait de s'intéresser seulement à la dynamique asymptotique de trafic (i.e. boucles en série) pour un système de 3 gouttes afin de comprendre comment celui-ci s'auto-organise dans un état stationnaire en fonction des paramètres du problème.

5.3 Etude asymptotique à 3 corps

Dans ce problème de trafic, le système à 3 corps est le plus simple non-trivial. En effet, le système à 2 particules conduit à 2 types de dynamique triviale selon les dimensions de la boucle. Si les longueurs des branches et la résistance des gouttes sont telles que $L_{\downarrow} + L_p < L_{\uparrow}$, alors les 2 gouttes empruntent à chaque fois la branche du bas L_{\downarrow} . Dans ce cas, les 2 gouttes traversent les boucles à la même vitesse et leur distance n'est pas modifiée. Si en revanche on a $L_{\downarrow} + L_p > L_{\uparrow}$, alors la seconde goutte prend la branche du haut L_{\uparrow} . Etant plus longue, la branche du haut est parcourue par la seconde goutte en un temps supérieur au temps de traversée de la branche du bas par la première goutte. Ainsi la distance inter-particule ne fait que croître au passage des boucles successives jusqu'à dépasser la portée des interactions λ_{max} . Dans les 2 cas, la dynamique asymptotique est gelée. Ceci justifie de s'intéresser en premier lieu au problème à 3 corps.

Ce problème dépend de 2 paramètres sans dimension, tels que $a = L_{\uparrow}/L_{\downarrow}$

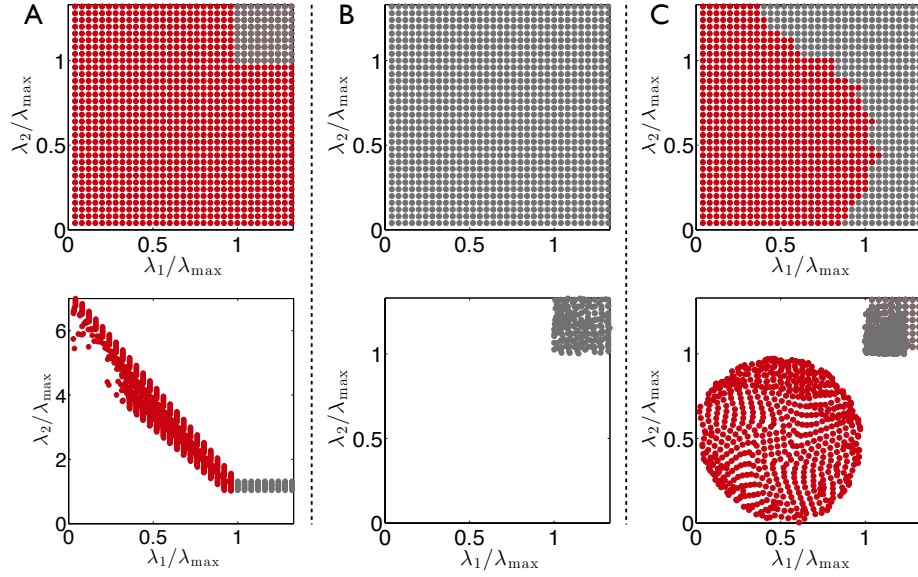


FIGURE 5.6: 3 types de dynamique : A. Evaporation ($a = 3$, $c = 1$), B. Absorption ($a = 4/3$, $c = 1$) C. Convergence vers un attracteur ($a = 10/9$, $c = 10/9$).

quantifiant l'asymétrie des boucles et $c = L_p/L_\downarrow$ mesurant à quel point les gouttes "bouchent" les canaux dans lesquels elles se déplacent. En fonction de ces 2 paramètres, 3 types de dynamiques sont observés. Je présente tout d'abord ces 3 types de dynamiques en les expliquant qualitativement et en traçant le diagramme des phases de la dynamique dans le plan $(1/a, 1/c)$. Dans un second temps, j'insère l'article "Hamiltonian traffic dynamics in microfluidic-loop networks" (*Phys. Rev. Lett.* **108**, 034501 (2012)) s'attardant sur la troisième dynamique observée.

5.3.1 3 types de dynamiques

La figure 5.3 présente un schéma du système étudié en précisant les notations utilisées. Les distances entre les 3 gouttes sont notées λ_1 et λ_2 , la première étant la distance entre les gouttes rentrant en dernier dans les boucles.

En fonction des paramètres a et c trois types de dynamiques sont observés. La figure 5.6 donne un exemple de chacune de ces dynamiques. Les conditions initiales utilisées sont tracées dans le plan $(\lambda_1/\lambda_{\max}, \lambda_2/\lambda_{\max})$ en haut de cette figure. En bas est représenté chacun de ces couples $(\lambda_1/\lambda_{\max}, \lambda_2/\lambda_{\max})$ après évolution dans 30 boucles (i.e. au temps $n = 30$).

Le cas A correspond à une dynamique dite "d'évaporation". Aux temps longs, pour les conditions initiales telles que l'une des distances λ_1 ou λ_2 est inférieure à λ_{\max} (points rouges figure 5.6A), λ_1 reste constant alors que λ_2 ne fait que

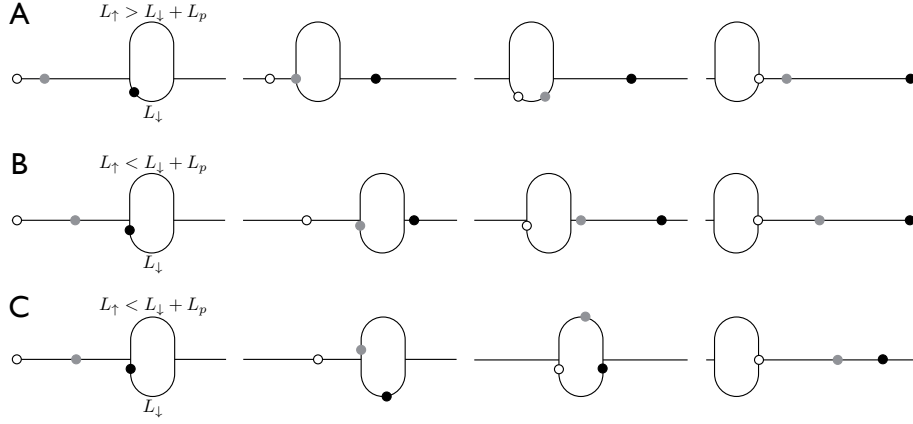


FIGURE 5.7: Schémas illustrant les 3 types de dynamique asymptotique des 3 gouttes dans une boucle : A. Evaporation. B. Absorption. C. Attracteur.

croître, voir schéma figure 5.7A. Les deux dernières gouttes avancent donc à la même vitesse à travers les boucles alors que la première avance plus vite et se détache de ce cluster de 2 particules. Cette dynamique est observée dans le cas où $L_{\downarrow} + L_p < L_{\uparrow}$. Elle est donc obtenue pour des gouttes de petites tailles ou des branches très asymétriques, où l'interaction effective entre 2 gouttes est nulle (seule la dynamique à 3 corps donne une interaction effective non nulle). Cette dynamique est observée aux temps longs car une goutte seule empruntant le chemin L_{\downarrow} avance plus vite dans la boucle que 2 gouttes empruntant le même chemin L_{\downarrow} . En effet, la résistance dans le deuxième cas est plus importante et le débit plus faible. Pour les conditions initiales telles que λ_1 et λ_2 sont supérieurs à λ_{\max} , le système n'évolue pas car les gouttes n'interagissent pas au travers de la boucle (point gris figure 5.6A).

Le cas B a été appelé dynamique "d'absorption". Quelque soit la condition initiale, le système converge vers un état absorbant où la dynamique est gelée : λ_1 et λ_2 sont supérieurs à λ_{\max} et les gouttes n'interagissent plus, voir schéma figure 5.7B. Cette dynamique est observée pour des valeurs des paramètres a et c intermédiaires (et tels que $L_{\downarrow} + L_p > L_{\uparrow}$) : les interactions entre gouttes sont suffisantes pour ne pas conduire à une dynamique évaporative, mais pas assez importantes pour maintenir la cohérence du cluster de 3 gouttes.

Le dernier cas correspond à une dynamique où l'on observe la convergence vers un attracteur. Cette dynamique est obtenue pour des boucles très peu asymétriques et/ou une résistance de goutte importante (tels que $L_{\downarrow} + L_p > L_{\uparrow}$ comme dans le cas B). Les interactions entre les particules sont alors fortes et le cluster de 3 gouttes reste cohérent pour une large gamme de conditions initiales (points rouges figure 5.6C), voir schéma figure 5.7C. Les autres conditions initiales convergent vers le système gelé où il n'existe plus aucune interaction (points gris figure 5.6C). Cette dynamique est décrite de manière détaillée dans

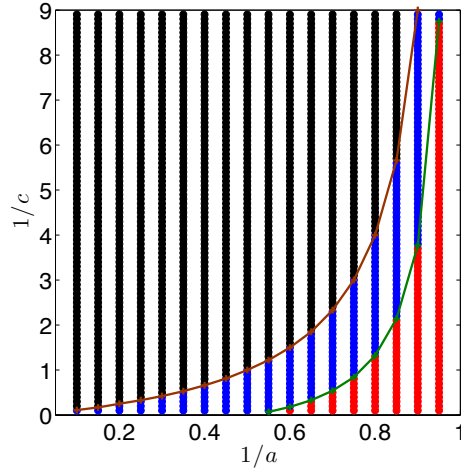


FIGURE 5.8: Diagramme de phase dans le plan $(1/a, 1/c)$. Points noirs : dynamique d'évaporation. Points bleus : dynamique absorbante. Points rouges : Existence d'un attracteur.

la section suivante.

Pour conclure cette section, je présente figure 5.8 le diagramme des phases de la dynamique dans le plan $(1/a, 1/c)$ qui résume les interprétations qualitatives faites. Les points noirs correspondent à une dynamique d'évaporation, les points bleus à une dynamique absorbante et les points rouges à l'existence d'un attracteur.

5.3.2 Hamiltonian traffic dynamics in microfluidic-loop networks

Abstract

Recent microfluidic experiments revealed that large particles advected in a fluidic loop display long-range hydrodynamic interactions. However, the consequences of such couplings on the traffic dynamics in more complex networks remain poorly understood. In this letter, we focus on the transport of a finite number of particles in one-dimensional loop networks. By combining numerical, theoretical, and experimental efforts, we evidence that this collective process offers a unique example of Hamiltonian dynamics for hydrodynamically interacting particles. In addition, we show that the asymptotic trajectories are necessarily reciprocal despite the microscopic traffic rules explicitly break the time reversal symmetry. We exploit these two remarkable properties to account for the salient features of the effective three-particle interaction induced by the exploration of fluidic loops.

Introduction

The long-range nature of the hydrodynamic interactions is responsible for fascinating collective phenomena in non-equilibrium suspensions, such as the velocity fluctuations of sedimenting particles [11], and the emergence of coherent structures in isotropic suspensions of active particles [12]. However, in confined geometries, the walls screen exponentially the correlations of the particle velocity [13]. Hence, no collective traffic phenomenon can occur when dilute suspensions flow in ducts having a width comparable to the particle size. Nonetheless, recent microfluidic experiments in channels including a loop, revealed a rich variety of collective dynamics, such as multiperiodic and multistable traffic patterns [14, 3, 15, 16, 2, 4, 5]. These experimental observations have been rationalized on the basis of two empirical rules [2] : as a particle enters a loop, it takes the branch in which the flow rate is maximal, and (ii) the particles partly obstruct the branch in which they flow. Consequently, the particle velocity at a node is a function of the particle positions in the whole loop, thereby inducing localized but long-range hydrodynamic interactions. So far, most of the research on microfluidic traffic flows have been dedicated to the transport through a *single* fluidic loop fed at a constant rate by a continuous droplet/bubble stream.

In this letter, we investigate the dynamics of a finite number of particles cruising in an extended loop-network, see Fig. 5.3. We henceforth focus on the three-body problem. This setup is the basic building block to model the traffic dynamics of dilute suspensions (the case of two particles being trivial). Our primary idea is to consider the traffic through a single loop as a scattering process, which maps the distances $\lambda(n) = [\lambda_1(n), \lambda_2(n)]$ between the three particles entering the loop n into a new set of distances $\lambda(n+1) = \mathcal{S}[\lambda(n)]$, where \mathcal{S} is the scattering map. The transport through the entire network is then conceived as a discrete dynamical system, for which the loop index n stands for the time variable. From this perspective, we first evidence that, remarkably, the asymptotic traffic dynamics is Hamiltonian. To the best of our knowledge, this is the only system of hydrodynamically interacting particles, for which an Hamiltonian description exists. Moreover, we show that the dynamics is asymptotically invariant upon time reversal symmetry despite the microscopic traffic rules are explicitly non-reciprocal. We exploit these two features to account for the geometrical and the dynamical properties of the scattering map \mathcal{S} . We close this paper, by comparing our theoretical predictions to microfluidic experiments. A quantitative agreement is found without any free fitting parameter.

Results

We use a well established framework to model the traffic dynamics in a fluidic network made of a chain of N identical loops [14]. Precisely, it consists of four rules, which have proven to yield excellent agreement with the experiments [14, 16, 2, 4, 5] : (i) The flow state of the fluid in the network is given by the analogous of the Kirchhoff laws. (ii) The particles are supposed to have a constant mobility coefficient. Therefore, we identify the fluid and the particle

velocities. (iii) When it reaches a vertex, a particle takes the branch where the fluid velocity is the higher. Note that this empirical rule, observed on deformable particles, is explicitly *non-reciprocal*. (iv) The particles partly obstruct the channels in which they journey. Precisely, the hydrodynamic resistances, expressed in unit-length, are given by : $L_{\downarrow,\uparrow}(n_{\downarrow,\uparrow}) = L_{\downarrow,\uparrow} + n_{\downarrow,\uparrow}L_p$, where the $n_{\downarrow,\uparrow}$ are the numbers of particles advected in the upper and in the lower branches respectively. The $L_{\downarrow,\uparrow}$ represent the branches' length, and L_p is the constant additional resistance induced by a single droplet. It follows that the particle velocity in the upper branch is :

$$v_{\uparrow} = v \frac{L_{\downarrow}(n_{\downarrow})}{L_{\downarrow}(n_{\downarrow}) + L_{\uparrow}(n_{\uparrow})}, \quad (5.2)$$

where v is the fluid velocity outside the loops. A symmetric formula holds for the lower branch. We apply the above rules numerically using the event-driven algorithm introduced in [6] for a 1-loop network and iterate it N times. We record the distances $\lambda_1(n)$ and $\lambda_2(n)$, irrespective of the particle ordering, between the particles entering the loop n , see Fig. 5.3. The traffic dynamics is parametrized by two dimensionless numbers : the loop-aspect ratio $a \equiv L_{\uparrow}/L_{\downarrow}$ and the "clogging-parameter" $c \equiv L_p/L_{\downarrow}$, which quantifies how much a particle hinders the flow in a given branch. In all that follows, we restrain ourselves to weakly asymmetric loops for which $1 < a < 2$ and $a < 1 + c$. Within this approximation, a particle entering a loop journeys through the less occupied branch, or through the lower branch if the loop is empty.

The gross features of the traffic dynamics do not depend on the aspect ratio a . The phase plane (λ_1, λ_2) is divided into two basins of attraction, Fig. 5.9(a). Starting from the rightmost basin, the system is quickly absorbed into the upper-right part of the plane, where the interparticle distances remain constant, Figs. 5.9(b) and 5.9(c). Starting from the leftmost basin, the system reaches a compact region filled with a continuous ensemble of periodic orbits centered on a unique fixed point. The distances oscillate around a constant value, and the orbits are either one dimensional curves, or zero dimensional (viz. returning repeatedly to a finite number of points). Two typical examples are given in Figs. 5.9(b) and 5.9(c) and in the appendix 5.5.1. These two regions are reached after ~ 10 loops.

The absorbing region is defined by the inter-particle distance λ_{\max} above which a particle enters the loop after the previous one has left it. This distance is easily deduced from Eq. 5.2 : $\lambda_{\max} = L_{\downarrow} \left(1 + \frac{1+c}{a}\right)$. Above λ_{\max} , the particles do not interact, and the scattering-map is trivial whatever a and c : $\mathcal{S} = \mathbb{I}$. Conversely, the geometry and the topology of the closed orbits strongly depend on the clogging parameter. First, we shall distinguish two regimes from the periods of the orbits. In Fig. 5.11, we show the variations of the typical oscillation period, τ , as a function of the clogging parameter c . There exist two limit values, c^- and c^+ , below and above which all the orbits share the same period. Moreover, for $c < c^-$, and $c > c^+$, the 1D-orbits are self-similar ellipses centered on a marginally stable fixed point, which lies on the line $\lambda_1 = \lambda_2$, see Fig. 5.9(b). Therefore, the \mathcal{S} -map is necessarily affine for this range of parameters. We emphasize that

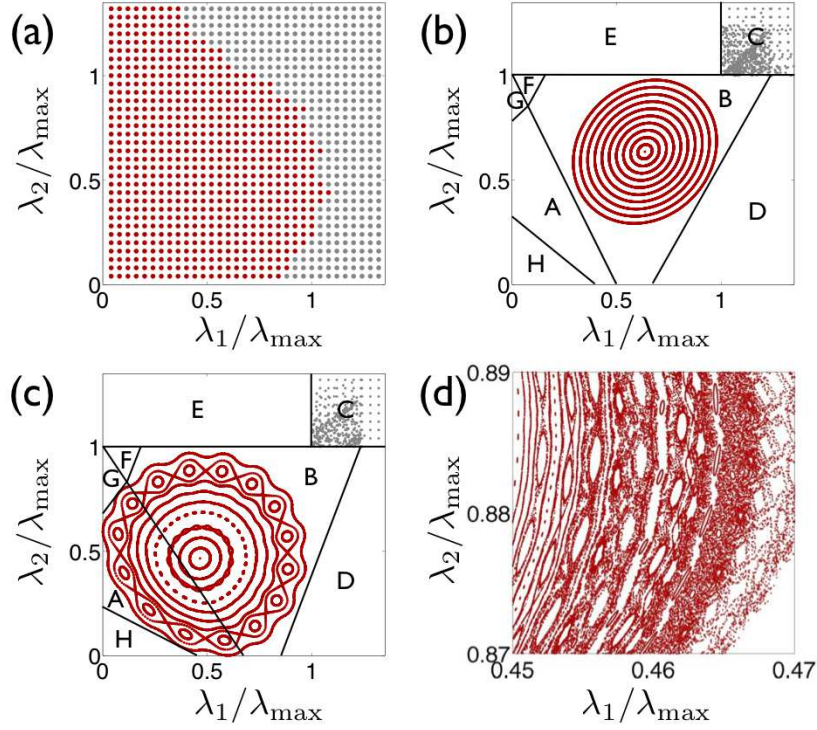


FIGURE 5.9: Numerical results obtained for : $a = 10/9$. (a)- Basins of attraction of the \mathcal{S} -map. The grey dots correspond to initial distances yielding stationary asymptotic dynamics (zone C). The red dots converge to closed periodic orbits. Clogging parameter : $c = 10/9$. (b)- Dots : Superimposed asymptotic trajectories for $c = 20/9$. The red (resp. grey) trajectories are enclosed in region B (resp. C). The 8 polygons correspond to the 8 trafficking scenarios introduced in page 3. (c)- Dots : Superimposed asymptotic trajectories, same parameters as in (a). The red (resp. grey) trajectories are enclosed in regions A and B (resp. in region C). (d)- Close-up of the edge of one island, same parameters as in (c).

$\lambda_1 = \lambda_2$ is a symmetry axis of the ellipses independently of a and c . In contrast, for intermediate clogging parameters ($c^- < c < c^+$), τ strongly depends on the initial conditions, and more than one period is detected, see Fig. 5.11. In addition, at least one of the invariant curves has a non-elliptical shape. However, the global symmetry of the phase portrait with respect to $\lambda_1 = \lambda_2$ is preserved, see Fig. 5.9(c). Several closed orbits are destabilized into separatrix and island chains centered on stable p -periodic points. Trajectories with $p = 15$ are clearly seen in Fig. 5.9(c). We systematically observed a hierarchy of island chains, as exemplified in the close-up shown in Fig. 5.9(d). The inner part of the largest islands clearly include island chains as well. They are separated by large chaotic regions, which also exist at the largest scale of the phase portrait, though they are much less extended.

We close this numerical section with the first main result of this letter. Remarkably, all the features of the phase portrait are the hallmarks of Hamiltonian mappings, despite the traffic dynamics is a driven dissipative process. We shall note that fluid mechanics offers other examples of Hamiltonian descriptions for advected particles. However, these models have so far been restricted to non-interacting passive tracers in bidimensional and incompressible fluids, for which the stream function readily provides an effective Hamiltonian [17]. The system, we consider here, does not belong to this class. Both the loop geometry and the effective hydrodynamic coupling between the particles, make impossible the use of a stream function as an effective Hamiltonian.

To elucidate the Hamiltonian nature of the trafficking dynamics, we construct explicitly the scattering map \mathcal{S} . To do so, we first note that there exist 8 different traffic scenarios, labeled by $X = A, \dots, H$. These scenarios are defined by the time ordered sequences of the five occupation states, $(n_\uparrow, n_\downarrow)$, reached as the three particles journey through the loop. The system transit from one occupation state to an other, when a particle reaches one of the two vertices of the loop. To make this definition clearer, we write explicitly the sequences corresponding to the two scenarios, which chiefly rule the asymptotic dynamics. The scenario $A = \{(0, 1), (1, 1), (1, 2), (1, 1), (0, 1)\}$ is exemplified by the experimental pictures in Fig. 5.12(a). Three particles journey simultaneously in the loop, thereby inducing a change in the particle distances. Scenario $B = \{(0, 1), (1, 1), (1, 0), (1, 1), (0, 1)\}$, the loop is explored at most by two particles simultaneously. The other six traffic patterns are explicitly given in the appendix 5.5.2, and sketched in Fig. 5.10. Practically, \mathcal{S} is a piecewise map, which has a different analytical expression, \mathcal{S}_X , for each scenario. We first locate the regions of the phase plane in which each scenario prevails. To do so, using Eq. 5.2, we compute the five times, $t_X^{(i)}$, $i = 1 \dots 5$, at which a particle reaches a vertex. The linearity of the Kirchhoff laws, implies that the $t_X^{(i)}$ are linear functions of λ_1 and λ_2 . Consequently, the region corresponding to the scenario X is a polygon defined by the inequalities : $t_X^{(i)}(\lambda_1, \lambda_2) < t_X^{(i+1)}(\lambda_1, \lambda_2)$. The 8 polygons tile the phase plane as illustrated in Fig. 5.9. We can then calculate the two distances $\mathcal{S}_X(\lambda(n)) = (\lambda_1(n+1), \lambda_2(n+1))$ by computing the time intervals, which separate the exit of two subsequent particles from the loop,

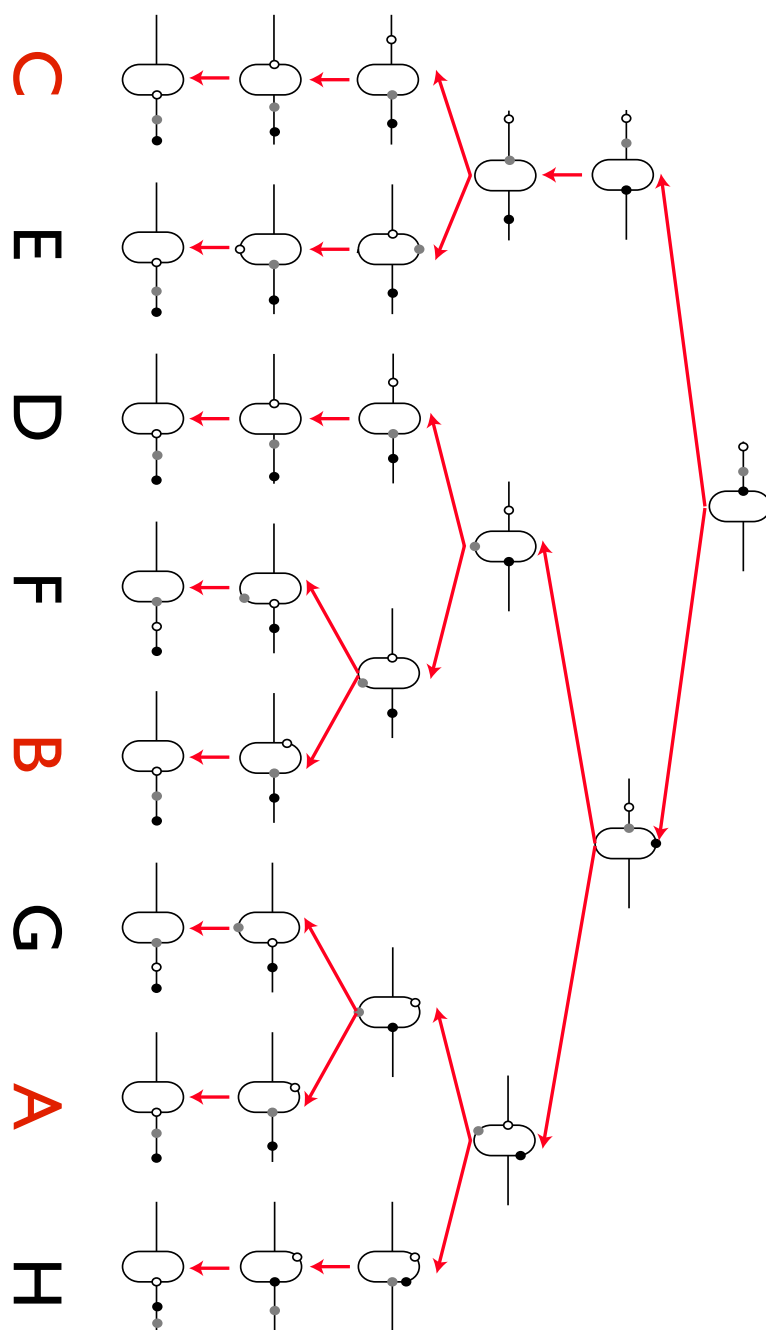


FIGURE 5.10: Sketch of the traffic sequences corresponding to the eight traffic regions through a single fluidic loop.

and multiplying it by the fluid velocity outside the loops, $v = v_\uparrow + v_\downarrow$. Again, the Kirchhoff laws require the \mathcal{S}_X to be affine functions of the interparticle distances : $\lambda(n+1) = M_X \cdot \lambda(n) + L_X$, where the M_X and the L_X are constant matrices and constant vectors. Their exact but lengthy expressions are given in the appendix 5.5.2.

We now exploit these analytical results to give a more physical insight on the geometrical and dynamical properties of the traffic dynamics. Firstly, by superimposing the numerical trajectories on the eight regions of the phase plane, we notice that the asymptotic orbits are enclosed only in the union of the polygons A and B , Fig. 5.9. Moreover, the orbits that are enclosed in only one of those two regions are ellipses. To account for these observations, we compute the eigenvalues and the determinant of the M_X . Independently of the values of a and c , M_X is area preserving, $\det M_X = 1$, in these two regions. Beyond our numerical observations, this central result unambiguously proves that the 3-particles dynamics is Hamiltonian in A and B . Furthermore, a tedious calculation proved that the eigenvalues of M_A and M_B are two complex conjugate numbers, see appendix 5.5.3. Consequently, the orbits are necessarily self-similar ellipses centered on a unique fixed point, when solely enclosed in A or B , in agreement with our numerical results, Fig. 5.9. In addition, the system necessarily converges toward the three Hamiltonian regions A , B , and C (region C corresponds to the trivial case $\mathcal{S}_C = \mathbb{I}$). Indeed, $|\det M_X|$ takes only two different expressions elsewhere. $|\det M_X| = a(1+c)/(a+c)$, in regions $X = D, E, F, G$ and $|\det M_X| = (1+c)(a+c)/[a(1+2c)]$, in region $X = H$. In both cases we verify that $|\det M_X| > 1$, as $1 < a < 1+c$. This implies that, asymptotically, the corresponding maps yield a continuous increase of $|\lambda_1|$ and $|\lambda_2|$. Therefore, as these maps are defined only in polygons having a finite width, we conclude that the system escapes from these regions as the particles flow through the loops. We also infer from this observation, that the largest invariant curve is tangent to one of the boundary lines of the polygon $A \cup B$, see Fig. 5.9.

A second and important generic result is that the asymptotic traffic dynamics is time reversible. We now outline the demonstration of this result, which we use to account for the symmetry of the phase portrait with respect to the $\lambda_1 = \lambda_2$ direction. In this context, time-reversal corresponds to the permutation of the inter-particle distances : $\mathcal{T} : (\lambda_1, \lambda_2) \rightarrow (\lambda_2, \lambda_1)$. Indeed, the last two particles that exit a loop correspond to the first two entering particles when reversing the flow. Saying that \mathcal{S} is time-reversible thus translates into $\mathcal{T}\mathcal{S}\mathcal{T}\mathcal{S} = \mathbb{I}$. This relation is obviously met along 1D trajectories enclosed in only one of the two regions A or B . The corresponding traffic scenarios indeed correspond to palindromic sequences of occupation states. The same result can be also directly checked, by computing $(\mathcal{T}\mathcal{S}_X)^2$, where $X = A, B$, using the analytic expressions of the affine maps given in the appendix 5.5.2. This identity is also satisfied for trajectories overlapping the polygons A and B as well. The reason for this is that $\mathcal{T}\mathcal{S}_X(\lambda) \in X$ for the λ s belonging to the invariant curves of the region $X = A, B$. The demonstration of this last result is tedious. It is detailed in the appendix 5.5.4. In order to show that the global symmetry of the phase portrait reflects the invariance upon time-reversal symmetry, let us consider a 1D

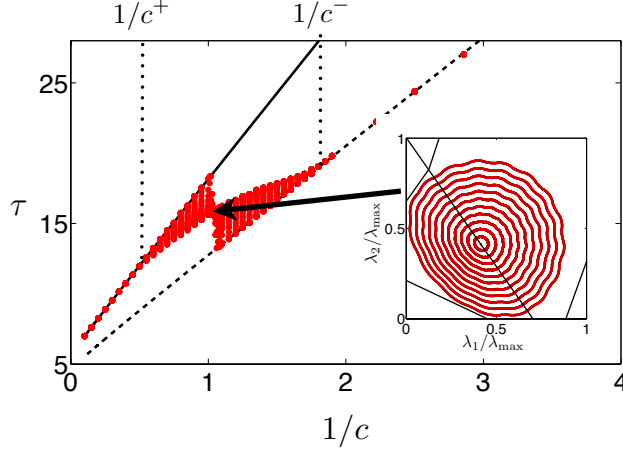


FIGURE 5.11: The period, τ , defined from the maximum of the power spectra of $\lambda_1(n)$, is plotted versus the inverse of the clogging parameter c , for $a = 10/9$. Each point corresponds to a different initial condition. Full (resp. dotted) line : theoretical predictions for the periods τ_B (resp. τ_A). Inset : Phase portrait for $c = 0.9628$, the period does not depend on the initial condition, but the self-similar trajectories are not elliptic.

orbit that crosses the symmetry line of \mathcal{T} , at a point $\lambda_s = \mathcal{T}\lambda_s$. Noting, that $\mathcal{T}^2 = \mathbb{I}$ and $\mathcal{S}^{-1} = \mathcal{T}\mathcal{S}\mathcal{T}$, we have $\mathcal{S}^{-n}\mathcal{T} = \mathcal{T}\mathcal{S}^n\mathcal{T}$. Combining this relation and $\mathcal{S}^n\lambda_s = \mathcal{S}^n\mathcal{T}\lambda_s$ yields $\mathcal{S}^n\lambda_s = \mathcal{T}\mathcal{S}^{-n}\lambda_s$. This last identity precisely means that the entire orbit is symmetric with respect to \mathcal{T} , as any λ on this orbit can be generated from λ_s ($\lambda = \mathcal{S}^n\lambda_s$).

We now complete this description by a brief comment on the properties of the mean oscillation period, τ , of the asymptotic dynamics. For small (resp. large) c , the orbits are included in the region A (resp. B) only. Therefore, the periods τ_A and τ_B correspond to the argument of the eigenvalues of the matrices M_A and M_B . They are plotted versus $1/c$ in Fig. 5.11, using the analytic expressions given in the appendix 5.5.3. For intermediate clogging parameters, the orbits overlap A and B . Over a period, n_A loops are explored according to the scenario A and n_B according to the scenario B . As the trajectories are closed curves around the fixed point, τ satisfies $2\pi/\tau = [2\pi\langle n_A \rangle/\tau_A + 2\pi\langle n_B \rangle/\tau_B] / [\langle n_A \rangle + \langle n_B \rangle]$. This relation implies that the oscillation period is bounded by τ_A and τ_B , in agreement with Fig. 5.11. We also understand why there exists a unique period when the fixed point is on the boundary-line between A and B . As it includes the center of the ellipses, this line separates the elliptic orbits of both regions into two identical parts. Therefore, $\langle n_A \rangle = \tau_A/2$, and $\langle n_B \rangle = \tau_B/2$. This is again confirmed by the plots in Fig. 5.11 and Fig. 5.11 inset.

Finally, to further confirm our theoretical predictions, we compare them to microfluidic experiments. Using the method introduced in [18, 19] and in sections

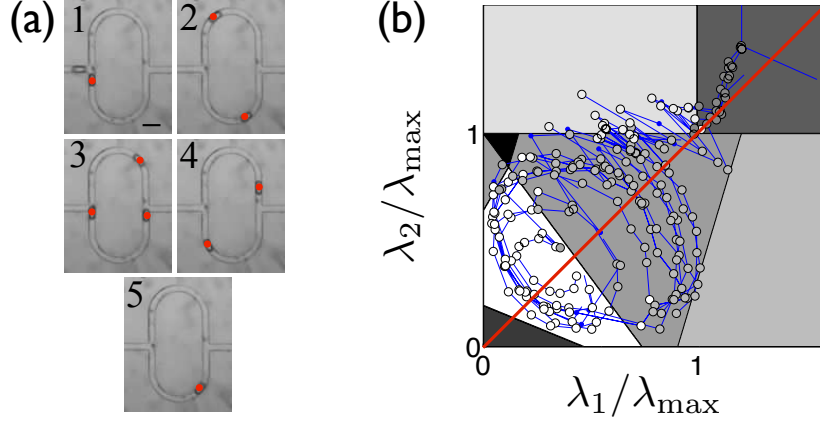


FIGURE 5.12: (a)- Five subsequent pictures of a typical experiment. Three drops (highlighted with a red dot) explore one loop according to the scenario *A*. (b)- Grey polygons : regions in which each scenario is expected from the theory. Connected dots : experimental trajectories recorded after 5 loops have been explored. The greylevel of each dot codes for the observed trafficking scenario. The blue dots correspond to a loop including a geometrical defect. Red line : $\lambda_1 = \lambda_2$.

2.1 and 2.2.2, we made a device including 20 identical loops ($L_{\uparrow} = 1,675$ mm, $L_{\downarrow} = 1.525$ mm, channel width $75\ \mu\text{m}$ and height $75\ \mu\text{m}$). We monitored the trajectories of several triplets of identical water droplets advected by a continuous phase of hexadecane oil, Fig. 5.12(a). By comparing the velocity of an isolated droplet in the upper branches and in the straight parts of the channel, we deduce the experimental value of $L_d = 1.2 \pm 0.25$ mm from Eq. 5.2. This makes possible a direct comparison between our experimental and our theoretical results, without any free fitting parameter. The evolution of $\lambda_1(n)$ and $\lambda_2(n)$ are plotted in Fig. 5.12(b). The grey value of each point codes for the traffic scenario we observed experimentally. Though, the fine structure of the phase portrait cannot be probed with a 20-loops network, an excellent agreement between our experimental and theoretical results is found, when considering the three generic features of the asymptotic-dynamics : (i) The two asymptotic-dynamics schemes. The distances oscillate around a fixed point when $\lambda_1, \lambda_2 < \lambda_{\max}$ and the traffic scenarios are of type *A* or *B only*. In contrast, when $\lambda_1, \lambda_2 > \lambda_{\max}$, we only observed small and non-predictible variations of the λ_i . Complete freezing was never observed due to fluctuations in the droplet size, inducing differences in the droplets' mobility. (ii) Our model perfectly predicts the location of the straight boundaries between the different traffic regions. (iii) The experimental phase portrait is symmetric with respect to the $\lambda_1 = \lambda_2$ direction.

In conclusion, combining experimental, numerical and theoretical tools, we have provided a comprehensive description of the 3-body traffic dynamics.

We expect that the generalization of our approach to coupled elementary traffic maps should provide a useful toolbox to design functional microfluidic devices.

5.4 Conclusion

En conclusion de ce chapitre, je justifie a posteriori la pertinence de l'étude du problème à 3 corps dans ce système de boucles. A la fin de ma première année de thèse j'ai eu l'occasion avec Denis Bartolo de superviser le stage d'un étudiant de Master 2, Julien-Piera Vest, portant principalement sur l'étude asymptotique du système à grand nombre de particules. Comme précisé dans les premières sections de ce chapitre, ce système est très complexe et il est difficile d'en tirer des conclusions générales. Mais nous avons tout de même obtenu un résultat numérique très intéressant. Dans le cas de boucles peu asymétriques (i.e. où l'on observe un attracteur pour la dynamique à 3 gouttes), le système de $N_p \gg 1$ n'est pas stable. En effet, quelle que soit la condition initiale, le cluster original formé par un grand nombre de gouttes se sépare en plusieurs clusters indépendants et cohérents possédant un nombre de particules faible et impair (3, 5 ou 7). Je parle de clusters indépendants car la distance les séparant est supérieure à λ_{\max} et ne fait que croître dans l'état stationnaire. Ainsi asymptotiquement, la dynamique à grand nombre de particules converge vers la dynamique à peu de corps étudiée ici.

5.5 Annexes : Hamiltonian traffic dynamics in microfluidic-loop networks : Supplementary informations

5.5.1 Oscillatory dynamics

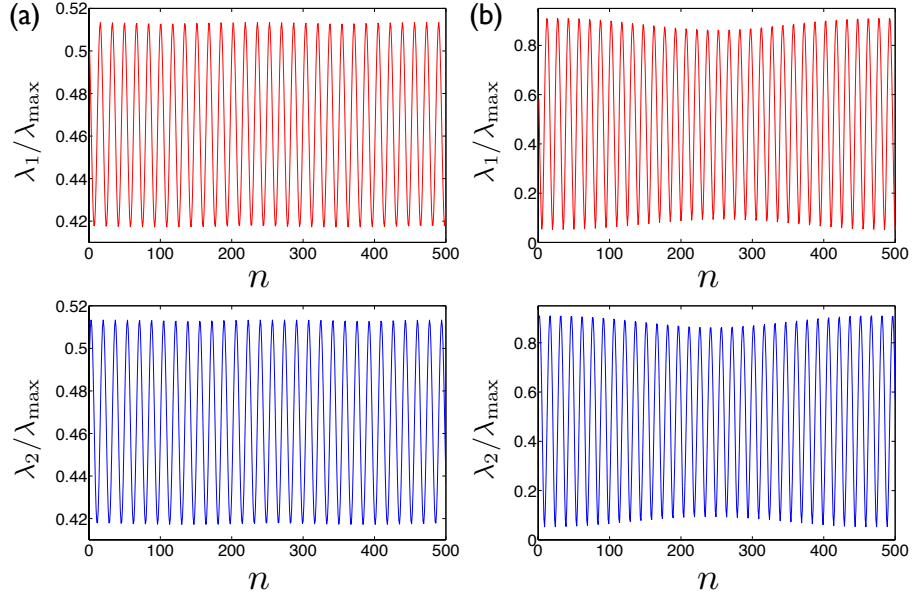


FIGURE 5.13: Numerical results obtained for $a = c = 10/9$. (a) Variations of $\lambda_1(n)$ and $\lambda_2(n)$ for a trajectory enclosed in region A only. (b) Variations of $\lambda_1(n)$ and $\lambda_2(n)$ for a trajectory, that overlaps the regions A and B.

We show the variations of the inter particle distance with the loop index n in Fig. 5.13. These numerical plots reveal : (i) that the oscillations of λ_1 and λ_2 are out of phase, and (ii) that more that one oscillation period exists when both the regions A and B are explored in the phase plane, Fig. 5.13. These two regions (defined in Fig. 5.9b and c) corresponds to the traffic scenarios A and B sketched in Fig. 5.10.

5.5.2 Traffic Scenarios

The eight different traffic scenarios are sketched in the figure 5.10. We recall that the map \mathcal{S} , defined by $\lambda(n+1) = \mathcal{S}(\lambda(n))$ is a piecewise affine map. Its exact expressions in the eight regions associated to the scenarios $X = A, B, \dots, H$ are (setting λ_{\max} as the unit length) :

— Region $A = \{(0, 1), (1, 1), (1, 2), (1, 1), (0, 1)\}$:

$$\begin{aligned} \begin{bmatrix} \lambda_1(n+1) \\ \lambda_2(n+1) \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} \frac{(a+c)(a+c+1)}{a(c+1)(a+2c+1)} & -\frac{c}{c+1} \\ \frac{c}{c+1} & \frac{a(2c+1)(a+2c+1)}{(c+1)(a+c)(a+c+1)} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \lambda_1(n) \\ \lambda_2(n) \end{bmatrix} \\ &+ \begin{bmatrix} \frac{2c-a(a+c)+1}{c+1} \\ \frac{a(a+2c+1)(a^2+(a-2)c-1)}{(c+1)(a+c)(a+c+1)} \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (5.3)$$

— Region $B = \{(0, 1), (1, 1), (1, 0), (1, 1), (0, 1)\}$:

$$\begin{aligned} \begin{bmatrix} \lambda_1(n+1) \\ \lambda_2(n+1) \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} \frac{a+c}{ca+a} & -\frac{c(a+c)}{(c+1)(a+c+1)} \\ \frac{c(a+c)}{(c+1)(a+c+1)} & \frac{a(a+2c+1)(2ca+a+2c(c+1)+1)}{(c+1)(a+c)(a+c+1)^2} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \lambda_1(n) \\ \lambda_2(n) \end{bmatrix} \\ &+ \begin{bmatrix} \frac{-(a-1)(a+1)^2-(a-2)c^2+(-2a^2+a+2)c}{(c+1)(a+c+1)} \\ \frac{a(a+2c+1)((a-1)(a+1)^2+(a-2)c^2+(a(2a-1)-2)c)}{(c+1)(a+c)(a+c+1)^2} \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (5.4)$$

— Region $C = \{(0, 1), (0, 0), (0, 1), (0, 0), (0, 1)\}$:

$$\begin{bmatrix} \lambda_1(n+1) \\ \lambda_2(n+1) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \lambda_1(n) \\ \lambda_2(n) \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \end{bmatrix} \quad (5.5)$$

— Region $D = \{(0, 1), (1, 1), (1, 0), (0, 0), (0, 1)\}$:

$$\begin{bmatrix} \lambda_1(n+1) \\ \lambda_2(n+1) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & -\frac{ac}{a+c+1} \\ 0 & \frac{a(c+1)}{a+c} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \lambda_1(n) \\ \lambda_2(n) \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} \frac{c-a(a^2+a+(a-1)c-1)+1}{a+c+1} \\ \frac{(a-1)a(a+c+1)}{a+c} \end{bmatrix} \quad (5.6)$$

— Region $E = \{(0, 1), (0, 0), (0, 1), (1, 1), (1, 0)\}$:

$$\begin{bmatrix} \lambda_1(n+1) \\ \lambda_2(n+1) \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{a(c+1)}{a+c} & 0 \\ \frac{c(c+1)}{(a+c)(a+c+1)} & 1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \lambda_1(n) \\ \lambda_2(n) \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} \frac{(a-1)a(a+c+1)}{a+c} \\ -\frac{c(c+1)}{(a+c)(a+c+1)} \end{bmatrix} \quad (5.7)$$

— Region $F = \{(0, 1), (1, 1), (1, 0), (1, 1), (1, 0)\}$:

$$\begin{aligned} \begin{bmatrix} \lambda_1(n+1) \\ \lambda_2(n+1) \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} -1 & \frac{ac}{a+c+1} \\ 1 & \frac{a(a+2c+1)}{(a+c)(a+c+1)} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \lambda_1(n) \\ \lambda_2(n) \end{bmatrix} \\ &+ \begin{bmatrix} a \left(\frac{a-1}{a+c} + a + \frac{a+1}{a+c+1} - 2 \right) \\ 0 \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (5.8)$$

— Region $G = \{(0, 1), (1, 1), (1, 2), (1, 1), (1, 0)\}$:

$$\begin{aligned} \begin{bmatrix} \lambda_1(n+1) \\ \lambda_2(n+1) \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} -\frac{a+c+1}{a+2c+1} & \frac{ac}{a+c} \\ 1 & \frac{a(a+2c+1)}{(a+c)(a+c+1)} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \lambda_1(n) \\ \lambda_2(n) \end{bmatrix} \\ &+ \begin{bmatrix} \frac{a(a^2+(a-2)c-1)}{a+c} \\ 0 \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (5.9)$$

— Region $H = \{(0, 1), (1, 1), (1, 2), (0, 2), (0, 1)\}$:

$$\begin{aligned} \begin{bmatrix} \lambda_1(n+1) \\ \lambda_2(n+1) \end{bmatrix} &= \begin{bmatrix} \frac{(a+c)(a+c+1)}{a(a+2c+1)} & 1 \\ -\frac{c(a+c)}{2ca+a} & \frac{a+1}{a+c+1} - 2 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \lambda_1(n) \\ \lambda_2(n) \end{bmatrix} \\ &+ \begin{bmatrix} 0 \\ -\frac{(a+2c+1)(a^2+(a-2)c-1)}{(a+c+1)(2c+1)} \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (5.10)$$

5.5.3 Eigenvalues in the regions A and B

The eigenvalues of the matrices M_A and M_B are complex conjugate and their modules equal to 1. The argument of the eigenvalues corresponds to a rotation of angle θ in the phase plane, given by the lengthy expressions :

— Scenario A :

$$\theta_A = \arctan \left(\frac{a(a+c)(a+c+1)(a+2c+1) \sqrt{4 - \frac{(c^3+(8a^2+4a+1)c^2+2a(a+1)(4a+1)c+2a^2(a+1)^2)^2}{a^2(a+c)^2(a+c+1)^2(a+2c+1)^2}}}{c^3 + (8a^2 + 4a + 1)c^2 + 2a(a+1)(4a+1)c + 2a^2(a+1)^2} \right) \quad (5.11)$$

— Scenario B :

$$\theta_B = \arctan \left(\frac{a(a+c)(a+c+1)^2 \sqrt{\frac{c^2(c^2+4ac+c+2a(a+1))(-c+2a(a+c)-1)(c+2a(a+c+1))}{a^2(a+c)^2(a+c+1)^4}}}{c^3 + 2a(a+1)(3a+1)c + 2a^2(a+1)^2 + (2ac+c)^2} \right) \quad (5.12)$$

We readily infer that the maximal rotation angle is bounded by $\pi/2$. The corresponding temporal periods are given by $\tau_A = 2\pi/\theta_A$ and $\tau_B = 2\pi/\theta_B$.

We note also that the period of the \mathcal{S} map takes a more simple form in the two following asymptotic limits : $c \ll 1$ (implying that $a \sim 1$), $\tau_A \sim \pi\sqrt{3} + (4\pi/\sqrt{3})c^{-1}$, and $c \gg 1$, $\tau_B \sim 2\pi/\arctan(\sqrt{4a^2-1}) + 2\pi(4a^2+a-1)/(\sqrt{4a^2-1}\arctan(\sqrt{4a^2-1}))c^{-1}$. These two asymptotic formula yield an excellent agreement with our numerical findings.

5.5.4 Demonstration of the identity : $\mathcal{TST}\mathcal{S} = \mathbb{I}$

To finalize the demonstration of this identity, we need to show that the image of the region A by the involution \mathcal{TS} does not overlap the region B , and vice versa. To do so, let us first demonstrate that the boundary line that separates the regions A and B is invariant upon \mathcal{TS} . The λ s that belong to this line fulfill the condition : $t_A^{(2)}(\lambda) = t_A^{(3)}(\lambda) = t_B^{(2)}(\lambda) = t_B^{(3)}(\lambda)$. A straightforward calculation of these times yields the parametric equation of the boundary line :

$$\begin{cases} \lambda_1/\lambda_{\max} = t \\ \lambda_2/\lambda_{\max} = -\frac{(a+c)(a+c+1)}{a(a+2c+1)}t + 1 \end{cases} \quad (5.13)$$

Applying \mathcal{TS}_A to Eq. 5.13, we obtain another parametric equation for a straight line :

$$\begin{cases} \lambda'_1/\lambda_{\max} = \frac{a^2(a+2c+1)}{(c+1)(a+c+1)} - s \\ \lambda'_2/\lambda_{\max} = (a+c+1) \left(\frac{1-a}{c+1} + \frac{(a+c)}{a(a+2c+1)}s \right) \end{cases} \quad (5.14)$$

Setting $t = \frac{a^2(a+2c+1)}{(c+1)(a+c+1)} - s$, we readily show that the two set of equations parametrize the same line. Following the same method we show that the boundary line is invariant upon \mathcal{TS}_B as well.

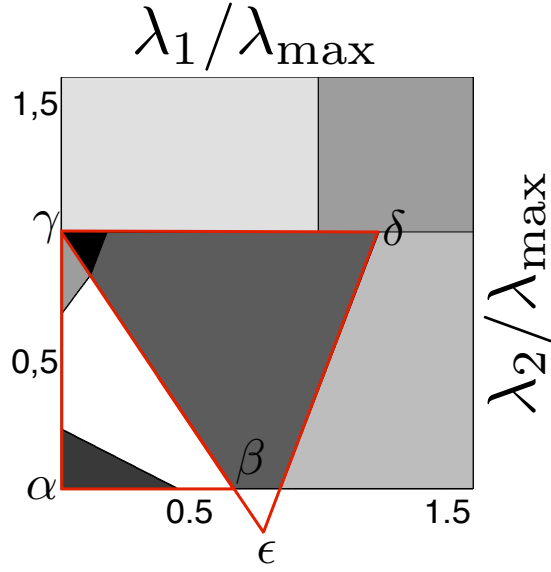


FIGURE 5.14: Tiling of the phase plane by the 8 polygonal regions, and localization of the triangles : (α, β, γ) and $(\gamma, \delta, \epsilon)$.

As the region A is enclosed in the triangle (α, β, γ) defined in Fig. 5.14, showing that the $\mathcal{TS}_A(\alpha = (0, 0))$ is located below the boundary line implies, that for all $\lambda \in A$, and lying along an invariant curve : $\mathcal{STS}(\lambda) = \mathcal{TS}_A \mathcal{TS}_A(\lambda)$. This is readily done using Eq. 5.3. The same reasoning applies to region B which is enclosed in the triangle $(\gamma, \delta, \epsilon)$ also defined in Fig. 5.14.

We then conclude that for all $\lambda \in A \cup B$ and belonging to an invariant curve of \mathcal{S} : $\mathcal{STS}(\lambda) = \mathcal{TS}_A \mathcal{TS}_A(\lambda)$ or $\mathcal{STS}(\lambda) = \mathcal{TS}_B \mathcal{TS}_B(\lambda)$.

5.6 Bibliographie

- [1] Beatus, T., Bar-Ziv, R. H. & Tlusty, T. The physics of 2D microfluidic droplet ensembles. *Physics Reports* **516**, 103–145 (2012).
- [2] Engl, W., Roche, M., Colin, A., Panizza, P. & Ajdari, A. Droplet Traffic at a Simple Junction at Low Capillary Numbers. *Physical Review Letters* **95**, 1–4 (2005).
- [3] Fuerstman, M. J., Garstecki, P. & Whitesides, G. M. Coding/decoding and reversibility of droplet trains in microfluidic networks. *Science (New York, N. Y.)* **315**, 828–32 (2007).
- [4] Sessoms, D. *et al.* Droplet motion in microfluidic networks : Hydrodynamic interactions and pressure-drop measurements. *Physical Review E* **80**, 1–10 (2009).
- [5] Sessoms, D. A., Amon, A., Courbin, L. & Panizza, P. Complex Dynamics of Droplet Traffic in a Bifurcating Microfluidic Channel : Periodicity, Multistability, and Selection Rules. *Physical Review Letters* **105**, 154501 (2010).
- [6] Schindler, M. & Ajdari, A. Droplet Traffic in Microfluidic Networks : A Simple Model for Understanding and Designing. *Physical Review Letters* **100**, 1–4 (2008).
- [7] Belloul, M., Engl, W., Colin, A., Panizza, P. & Ajdari, A. Competition between Local Collisions and Collective Hydrodynamic Feedback Controls Traffic Flows in Microfluidic Networks. *Physical Review Letters* **102**, 194502 (2009).
- [8] Bretherton, F. The motion of long bubbles in tubes. *Journal of Fluid Mechanics* **10**, 166–188 (1961).
- [9] Labrot, V., Schindler, M., Guillot, P., Colin, A. & Joanicot, M. Extracting the hydrodynamic resistance of droplets from their behavior in microchannel networks. *Biomicrofluidics* **3**, 12804 (2009).
- [10] Choi, W. *et al.* Bubbles navigating through networks of microchannels. *Lab on a chip* **11**, 3970–8 (2011).
- [11] Guazzelli, E. & Hinch, J. Fluctuations and Instability in Sedimentation. *Annu. Rev. Fluid. Mech.* **43**, 97 (2011).
- [12] Saintillan, D. & Shelley, M. Orientational Order and Instabilities in Suspensions of Self-Locomoting Rods. *Physical Review Letters* **99**, 058102 (2007).
- [13] Liron, N. & Shahar, R. Stokes flow due to a Stokeslet in a pipe. *Journal of Fluid Mechanics* **86** (1978).
- [14] Jousse, F., Farr, R., Link, D., Fuerstman, M. & Garstecki, P. Bifurcation of droplet flows within capillaries. *Physical Review E* **74**, 1–6 (2006).
- [15] Prakash, M. & Gershenfeld, N. Microfluidic bubble logic. *Science (New York, N. Y.)* **315**, 832–5 (2007).

- [16] Cybulski, O. & Garstecki, P. Dynamic memory in a microfluidic system of droplets traveling through a simple network of microchannels. *Lab on a chip* **10**, 484–93 (2010).
- [17] Aref, H. Stirring by chaotic advection. *Journal of Fluid Mechanics* **143**, 1 (1984).
- [18] Galas, J.-C., Bartolo, D. & Studer, V. Active connectors for microfluidic drops on demand. *New Journal of Physics* **11**, 075027 (2009).
- [19] Bartolo, D., Degré, G., Nghe, P. & Studer, V. Microfluidic stickers. *Lab on a chip* **8**, 274–9 (2008).

Résumé

Ce travail de thèse expérimental porte principalement sur deux études concernant la dynamique collective de particules dans des écoulements à très faible nombre de Reynolds et dans des environnements confinés. Dans ces systèmes les particules interagissent via des couplages hydrodynamiques à longue portée d'origine géométrique ou topologique. Le thème général faisant le pont entre ces deux études est la notion de réversibilité hydrodynamique. De part les méthodes mises en oeuvre pour aborder ces problèmes, cette thèse se place à l'interface de trois grands domaines de la physique : l'hydrodynamique, la matière molle et les systèmes dynamiques.

Le premier système est un ensemble de gouttes micrométriques confinées dans une cellule de Hele-Shaw et soumis à un écoulement sinusoïdal afin de sonder la nature réversible de la dynamique. Cette expérience d'écho caractérisée par une dynamique microscopique complètement réversible met en évidence une transition de phase du premier ordre entre un état macroscopique réversible en dessous d'une certaine amplitude d'oscillation et un état macroscopique irréversible au dessus de cette amplitude. De plus, il est montré que cette transition n'est pas seulement dynamique mais également structurale.

La seconde étude correspond quant à elle à une expérience de trafic dans un réseau de boucles microfluidiques où la dynamique asymptotique du système à 3 corps est étudiée de manière extensive. En combinant des études numériques, analytiques et expérimentales, il est montré que cette dynamique de trafic est Hamiltonienne et réversible.

